



Titel

Numerische Untersuchung von laminaren
Methan/Luft-VormischflammenAutoren/
Autorinnen

Witt M., Griebel P. *

Erstellt

22. Dezember 2000

Zusammenfassung:

Das Ziel dieser numerischen Studie ist die Bestimmung der laminaren Flammengeschwindigkeit und der laminaren Flammenfrontdicke, beides charakteristische Kenngrößen von laminaren Flammen, die für die Klassifizierung von turbulenten Vormischflammen im sogenannten Borghi-Diagramm notwendig sind. Da bei gasturbinentypischen Betriebsbedingungen kaum experimentelle Ergebnisse vorliegen wird eine numerische Parameterstudie bei Variation der Parameter Eintrittstemperatur, Äquivalenzverhältnis und Druck mit Hilfe von drei verschiedenen Reaktionsmechanismen (C1-, LEEDS1.3-, und GRI3.0-Mechanismus) durchgeführt und die Ergebnisse mit den wenigen experimentellen Resultaten aus der Literatur verglichen. Dieser Vergleich zeigt, dass sich der GRI3.0-Mechanismus am besten für die Berechnung der laminaren Flammengeschwindigkeit eignet. Die Ergebnisse dieser Berechnungen werden deshalb in einer Korrelation für die laminare Flammengeschwindigkeit zusammengefasst.

Die verschiedene Methoden zur Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke werden in der vorliegenden Studie ebenfalls untersucht. Am geeignetsten erscheint die Bestimmung mit Hilfe der Methode von Zeldovich.

*** Kontaktadresse**

Dr. P. Griebel

PAUL SCHERRER INSTITUT

Allgemeine Energie/Verbrennungsforschung
Chemie der Verbrennung

CH-5232 Villigen PSI

Tel.: +41 56 310 4040

Email: peter.griebel@psi.ch

Inhaltsverzeichnis

1 Motivation	3
2 Theoretische Grundlagen	3
2.1 Laminare Flammengeschwindigkeit	3
2.2 Laminare Flammenfrontdicke	5
3 Ergebnisse	7
3.1 Laminare Flammengeschwindigkeit	7
3.1.1 Berechnungen mit dem GRI3.0-Mechanismus	7
3.1.2 Vergleich von numerischen und experimentellen Ergebnissen	9
3.1.3 Korrelation	15
3.2 Laminare Flammenfrontdicke	16
3.2.1 Laminare Temperatur-Flammenfrontdicke	16
3.2.2 Vergleich unterschiedlicher Bestimmungsmethoden	20
4 Schlussfolgerungen	23
5 Literaturverzeichnis	25

1 Motivation

Das Hauptziel des Projekts "Struktur turbulenter Vormischflammen unter Hochdruck" ist die experimentelle Untersuchung des Einflusses der Turbulenz auf die Struktur der Flammenfront und die Stickoxidbildung bei mageren CH₄/Luft-Vormischflammen. Die Experimente sollen unter Bedingungen erfolgen, wie sie typischerweise in stationären Gasturbinen vorliegen. Im Einzelnen sind dies:

Eintrittstemperaturen des Brennstoff/Luft-Gemisches bis zu $T_0 = 823 \text{ K}$,
 Äquivalenzverhältnisse im Bereich $\Phi = 0.5 - 0.4$ (bzw. Luftzahlen $\lambda = 2 - 2.5$)
 und Drücke bis zu $p_0 = 30 \text{ bar}$.

Die Klassifizierung von turbulenten Vormischflammen kann anhand des sogenannten BORGI-Diagramms [1] erfolgen, in dem der Flammentyp als Funktion charakteristischer Verhältnisse beschrieben wird. Auf der Abszisse ist das Verhältnis von turbulentem Makrolängenmass zur laminaren Flammenfrontdicke und auf der Ordinate das Verhältnis von turbulenter Geschwindigkeitsfluktuation zur laminaren Flammengeschwindigkeit aufgetragen. Mit Hilfe der dimensionlosen Kennzahlen turbulente Reynolds-, Damköhler- und Karlovitz-Zahl, die ebenfalls als Funktion der charakteristischen Verhältnisse darstellbar sind, können Vormischflammen bestimmten Flammentypen zugeordnet werden. Die charakteristischen turbulenten Grössen (Makrolängenmass und Geschwindigkeitsfluktuation) sollen in diesem Projekt experimentell bestimmt werden. Die Bestimmung der charakteristischen laminaren Grössen (Flammengeschwindigkeit und -frontdicke) erfolgte aufgrund mangelnder experimenteller Daten im relevanten Betriebsbereich (hoher Druck, hohe Temperatur, magere Gemische) mit Hilfe von numerischen Berechnungen. Hierzu wurden Rechnungen mit verschiedenen Reaktionsmechanismen durchgeführt, miteinander und zusätzlich auch mit den wenigen vorhandenen experimentellen Daten verglichen. Zusätzlich werden verschiedene in der Literatur beschriebene Methoden zur Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke diskutiert.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Laminare Flammengeschwindigkeit

Für die Beschreibung einer laminaren Vormischflamme müssen die Temperatur T , der Druck p , die Geschwindigkeit v und die partiellen Dichten ρ_i für die Stoffe von $i = 1$ bis N , in Abhängigkeit des Weges x bekannt sein. Durch die Erhaltungsgleichungen für die Masse, die Energie und den Impuls lassen sich diese Grössen bestimmen. Da diese Erhaltungsgleichungen ein sehr kompliziertes Differentialgleichungssystem bilden, gibt es vereinfachte Theorien zur Beschreibung laminarer Vormischflammen. Die wichtigsten sind die thermische Theorie und die Diffusionstheorie.

Die von MALLARD und LE CHATELIER [2] entwickelte thermische Theorie geht davon aus, dass der Transport von Wärme durch die Gasschichten der die Flammenfortpflanzung kontrollierende Mechanismus ist. Sie unterteilten die Flammenfront in die Vorwärmzone und die Reaktionszone (Bild 1). In der Vorwärmzone wird das einströmende Frischgas der Eintrittstemperatur T_0 durch Wärmeleitung entgegen der Strömungsrichtung auf die Zündtemperatur T_z aufgeheizt. In der sich anschliessenden Reaktionszone findet die Umsetzung des Brennstoffes zu den Produkten statt und die Temperatur erreicht die adiabate Flammentemperatur T_{ad} . Mit Hilfe dieser einfachen thermischen Theorie kann folgende Gleichung für die laminare Flammengeschwindigkeit

hergeleitet werden, anhand derer die Einflüsse der verschiedenen Parameter gut studiert werden können [3].

$$s_L \sim \sqrt{\frac{a \cdot \dot{\omega}}{\rho_0}} \quad (1)$$

Hierin stellen a die Temperaturleitfähigkeit (englisch: thermal diffusivity), $\dot{\omega}$ die Reaktionsrate und ρ_0 die Dichte des Frischgasgemisches dar. Werden die jeweiligen Ansätze für die Druckabhängigkeit von a und $\dot{\omega}$ in Gleichung (1) eingesetzt, so ergibt die Druckabhängigkeit der laminaren Flammengeschwindigkeit zu,

$$s_L \sim (p^{n-2})^{1/2} \quad (2)$$

worin n für die Reaktionsordnung steht.

Eine Erweiterung der thermischen Theorie ist die von ZELDOVICH und FRANK-KAMENETSKII [4] entwickelte Diffusionstheorie, in der angenommen wird, dass neben der Wärmeleitung auch der Energietransport durch Diffusion der Spezies für die Flammenfortpflanzung wichtig ist. Die Diffusion der Radikale wird in dieser Theorie vernachlässigt.

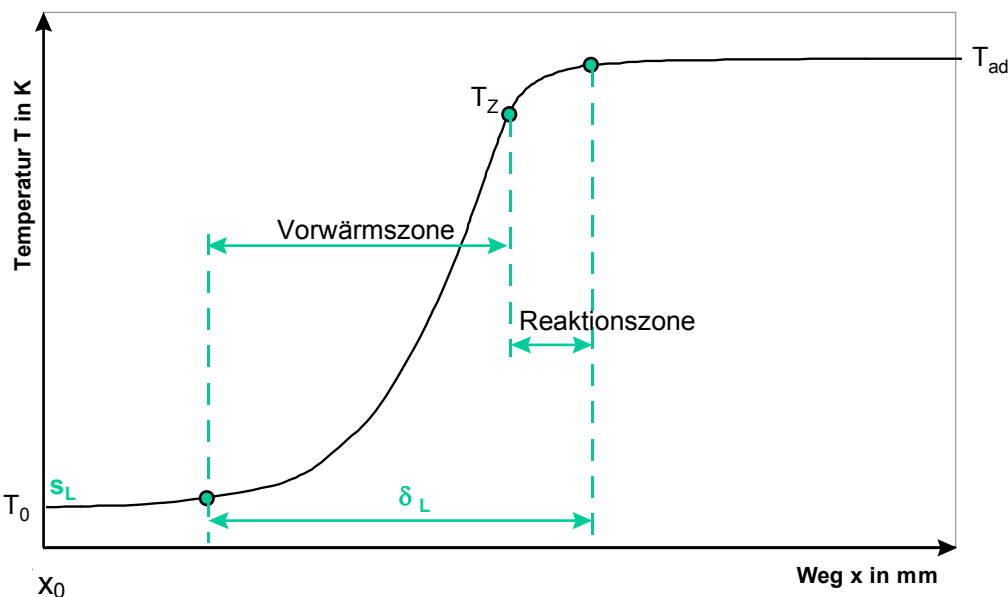


Bild 1: Laminare Flammenfront.

Neben der analytischen Lösung mit Hilfe dieser stark vereinfachten Theorien kann das Differentialgleichungssystem für eine ebene laminare Vormischflamme auch durch numerische Verfahren, z. B. mittels der kombinierten Zeit- und NEWTON-Intergrationstechnik basierend auf dem Schema von KEE et al. [5], gelöst werden. Je nach Art der laminaren Vormischflamme, brennerstabilisiert oder sich frei fortpropfand, ist hierbei die Vorgehensweise unterschiedlich. Bei der brennerstabilisierten Vormischflamme ist der Massenstrom bekannt; das Temperaturprofil wird entweder gemessen oder bei vernachlässigbaren Wärmeverlusten (adiabat) aus der Energieerhaltungsgleichung berechnet. Bei der sich frei fortpropfandenden Vormischflamme werden adiabate

Bedingungen vorausgesetzt und das Temperaturprofil wird immer aus der Energieerhaltungsgleichung berechnet. Bei diesem Typ wird das Schema von KEE grundsätzlich in zwei Schritte abgearbeitet. Im ersten Schritt erfolgt die Bewertung des Reaktionsgemisches hinsichtlich seiner thermodynamischen Eigenschaften und die Weiterverarbeitung mit dem entsprechenden chemischen Reaktionsmechanismus. Im zweiten Schritt werden aus den Eigenschaften der Spezies die Transporteigenschaften bestimmt.

Die Geschwindigkeit, mit der sich das unverbrannte Gemisch auf die Reaktionszone zubewegt, wird als laminare Flammengeschwindigkeit s_L bezeichnet. Sie ist gleich der Strömungsgeschwindigkeit bei $x = x_0$ (Bild 1). Nach dem Schema von KEE [5] kann die laminare Flammengeschwindigkeit s_L einer sich frei fortpflanzenden Vormischflamme aus

$$s_L = \frac{\dot{m}}{\rho_0} = \frac{\dot{m} \cdot R \cdot T_0}{p_0} \quad (3)$$

bestimmt werden. Die Dichte des Frischgasgemisches ρ_0 kann über die universelle Gaskonstante R , die Eintrittstemperatur T_0 und den Druck p_0 berechnet werden. Der Massenstrom pro Fläche $\dot{m}$ hängt von den Eintrittsbedingungen (T_0 , p_0) und der adiabaten Flammentemperatur T_{ad} ab. Er wird als Eigenwertproblem berechnet.

Die Haupteinflussgrößen der laminaren Flammengeschwindigkeit sind das Äquivalenzverhältnis Φ (Brennstoff/Luft-Verhältnis), die Eintrittstemperatur T_0 , der Druck p_0 und die Brennstoffart [3].

2.2 Laminare Flammenfrontdicke

Die laminare Flammenfrontdicke δ_L setzt sich wie bereits im vorangehenden Kapitel beschrieben aus der Vorwärmzone und der Reaktionszone zusammen (Bild 1). ABRAHAM et al. [6] haben Methoden zur Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke aufgezeigt. Eine Möglichkeit zur Bestimmung der auch als laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,Z}$ bezeichneten Flammenfrontdicke erfolgt mit Hilfe des thermischen Diffusionskoeffizienten D_G des Brennstoff/Luft-Gemisches und der laminaren Flammengeschwindigkeit s_L :

$$\delta_{L,Z} = \frac{D_G}{s_L} \quad (4)$$

Der Diffusionskoeffizient hängt von der Temperatur und dem Druck ab [7]:

$$D_{G2} = D_{G1} \frac{p_1}{p_2} \cdot \left(\frac{T_2}{T_1} \right)^{1.5} \quad (5)$$

Für einen bekannten Diffusionskoeffizient D_{G1} bei der Temperatur T_1 und dem Druck p_1 kann für die Temperatur T_2 und den Druck p_2 der Diffusionskoeffizient D_{G2} berechnet werden.

Als zweite Methode für die Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke kann nach WILLIAMS auch das im Bild 1 dargestellte Temperaturprofil der laminaren Vormischflamme verwendet werden. Dabei wird die Temperatur-Flammenfrontdicke aus dem Abstand (Weg in x-Richtung) zwischen den Positionen mit einem Temperaturanstieg

(von der Eintrittstemperatur T_0 auf die adiabate Flammentemperatur T_{ad}) von 5 % auf 95 % bestimmt.

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Temperatur-Flammenfrontdicke ist die Konstruktion der Tangente an den Wendepunkt des Temperaturprofils. Diese Methode ist im Bild 2 dargestellt. Aus dem Abstand (Weg in x-Richtung) der beiden Schnittpunkte der Tangente mit den horizontalen Linien der Eintrittstemperatur T_0 und der adiabaten Flammentemperatur T_{ad} ergibt sich die laminare Temperatur-Flammenfrontdicke $\delta_{L,T}$.

Tangente-

DINKELACKLER et al. [8] bestimmen die laminare Flammenfrontdicke über das OH- bzw. CH-Konzentrationsprofil der laminaren Vormischflammen. Dabei wurden die Methoden zur Bestimmung der CH- und OH-Flammenfrontdicke nicht näher beschrieben.

Die in der vorliegenden Arbeit verwendete Vorgehensweise wird anhand des Bildes 2 erläutert. Die laminare CH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,CH}$ kann aus dem Abstand (Weg in x-Richtung) der beiden Punkte bestimmt werden, bei denen die CH-Konzentration merklich zugenommen bzw. abgenommen hat. Die laminare OH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,OH}$ lässt sich aus dem Abstand (Weg in x-Richtung) der beiden Punkte bestimmen, bei denen die OH-Konzentration merklich zugenommen bzw. ihren Maximalwert erreicht hat. Auf die Problematik dieser relativ ungenauen Definitionen der beiden Methoden (merklich zugenommen bzw. abgenommen) wird im Kapitel 3.2.2 noch näher eingegangen.

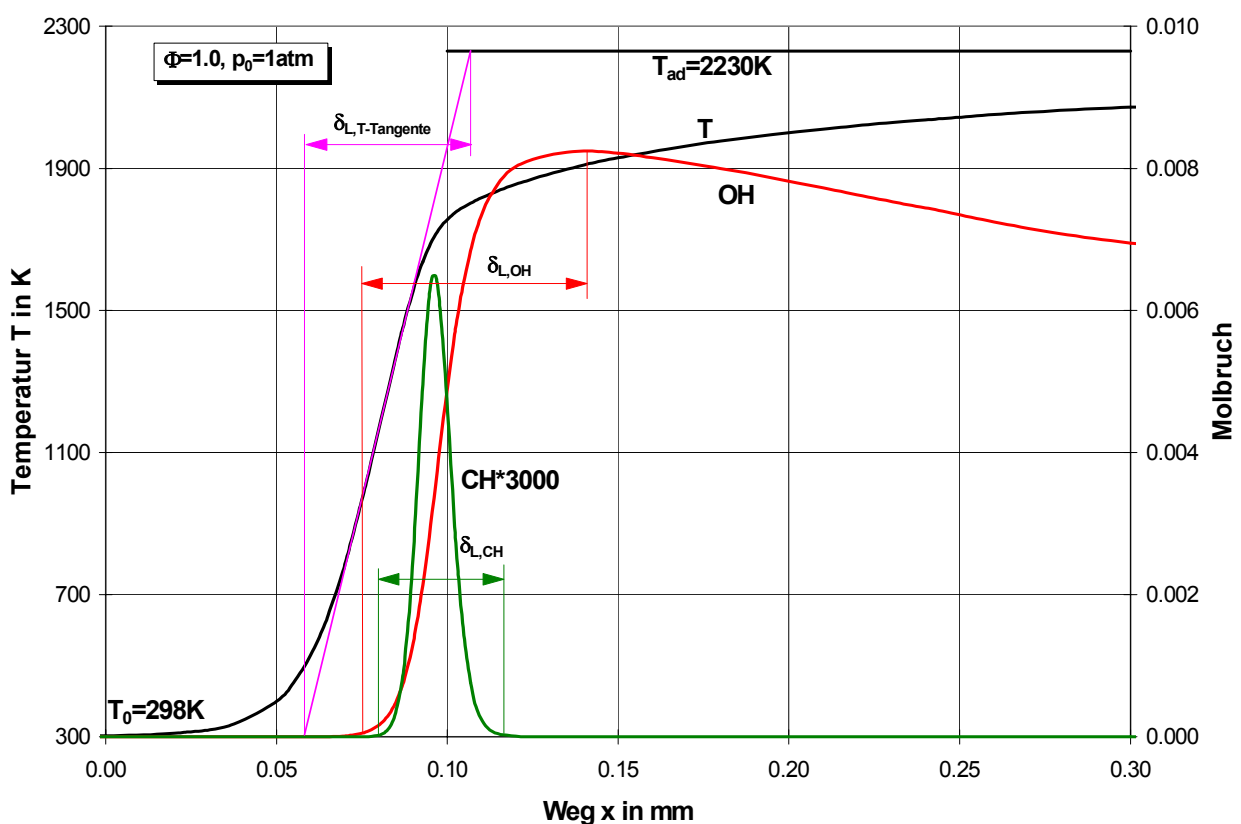


Bild 2: Methoden zur Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke.

Der im Bild 2 dargestellte Temperaturverlauf und die starken Unterschiede zwischen den Flammenfrontdicken ($\delta_{L,T}$, $\delta_{L,OH}$, $\delta_{L,CH}$) werden im Kapitel 3.2.1 bzw. 3.2.2 diskutiert.

3 Ergebnisse

Alle im folgenden dargestellten Ergebnisse wurden mit dem Programm PREMIX [5] berechnet, das Bestandteil des Programmpakets CHEMKIN ist.

3.1 Laminare Flammengeschwindigkeit

In dem Schema von KEE war ursprünglich ein C1-Mechanismus (17 Spezies und 62 Reaktionen) integriert. Dieser berücksichtigt jedoch nicht die mit zunehmendem Druck wichtiger werdenden höheren C-Verbindungen. Da die Rechenzeiten zur Bestimmung der laminaren Flammengeschwindigkeit sehr klein (etwa 7 min), d. h. nicht limitierend waren, wurden in den eigenen Rechnungen auch komplexere Mechanismen mit höheren C-Verbindungen verwendet. Hierbei handelte es sich um den GRI3.0-Mechanismus [9] (C₂-Mechanismus mit 53 Spezies und 562 Reaktionen) und den LEEDS1.3-Mechanismus [10] (C₄-Mechanismus mit 37 Spezies und 403 Reaktionen). Die Unterschiede der drei Mechanismen bezüglich der berechneten laminaren Flammengeschwindigkeiten werden im Kapitel 3.1.2 diskutiert.

3.1.1 Rechnungen mit dem GRI3.0-Mechanismus

Einfluss des Äquivalenzverhältnisses und der Eintrittstemperatur

Im Bild 3 sind die Einflüsse des Äquivalenzverhältnisses und der Eintrittstemperatur auf die adiabate Verbrennungstemperatur und die laminare Flammengeschwindigkeit von CH₄/Luft-Vormischflammen für einen Druck von $p_0 = 1 \text{ atm}$ dargestellt. Beide Grössen beeinflussen die laminare Flammengeschwindigkeit über die adiabate Flammentemperatur bzw. die Reaktionsrate.

Bei konstanter Eintrittstemperatur ist die adiabate Flammentemperatur und damit die Reaktionsrate aufgrund der Dissoziation nicht bei stöchiometrischem Gemisch ($\Phi = 1.0$), sondern bei leicht unterstöchiometrischem Gemisch ($\Phi = 1.0 - 1.1$) maximal. Damit ist auch die laminare Flammengeschwindigkeit bei leicht unterstöchiometrischem Gemisch am höchsten. Bei überstöchiometrischen Gemischen ($\Phi < 1.0$) nimmt mit sinkendem Äquivalenzverhältnis die adiabaten Flammentemperatur aufgrund des grösseren Sauerstoffüberschusses ab, und die laminare Flammengeschwindigkeit sinkt. Bei unterstöchiometrischen Gemischen ($\Phi > 1.0$) führen steigende Äquivalenzverhältnisse zu stärkerem Sauerstoffmangel und damit zu einer unvollständigen Verbrennung. Dies hat die Abnahme der adiabaten Flammentemperatur und damit der laminaren Flammengeschwindigkeit zur Folge.

Eine höhere Eintrittstemperatur führt zu einer höheren adiabaten Flammentemperatur und damit nimmt auch die laminare Flammengeschwindigkeit zu. Dieser Einfluss der Eintrittstemperatur auf die laminare Flammengeschwindigkeit hängt dabei zusätzlich vom Äquivalenzverhältnis ab. Ausgehend von einem stöchiometrischen Gemisch mit einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 298 \text{ K}$, nimmt die laminare Flammengeschwindigkeit für $\Phi = 0.5$ bzw. 1.3 auf 12.4% bzw. 62% ab. Bei $T_0 = 823 \text{ K}$ nimmt sie für $\Phi = 0.5$ bzw. 1.3 auf 45.8% bzw. 80.6% ab. Der Einfluss des Äquivalenzverhältnisses auf die laminare Flammengeschwindigkeit wird somit mit steigender Eintrittstemperatur schwächer.

Zusätzlich wird die laminare Flammengeschwindigkeit auch durch die Sauerstoffkonzentration beeinflusst. Bei zwei überstöchiometrischen Gemischen mit gleicher adiabater Flammentemperatur aber unterschiedlicher Eintrittstemperatur ist die laminare

Flammengeschwindigkeit des Gemisches mit der höheren Sauerstoffkonzentration grösser.

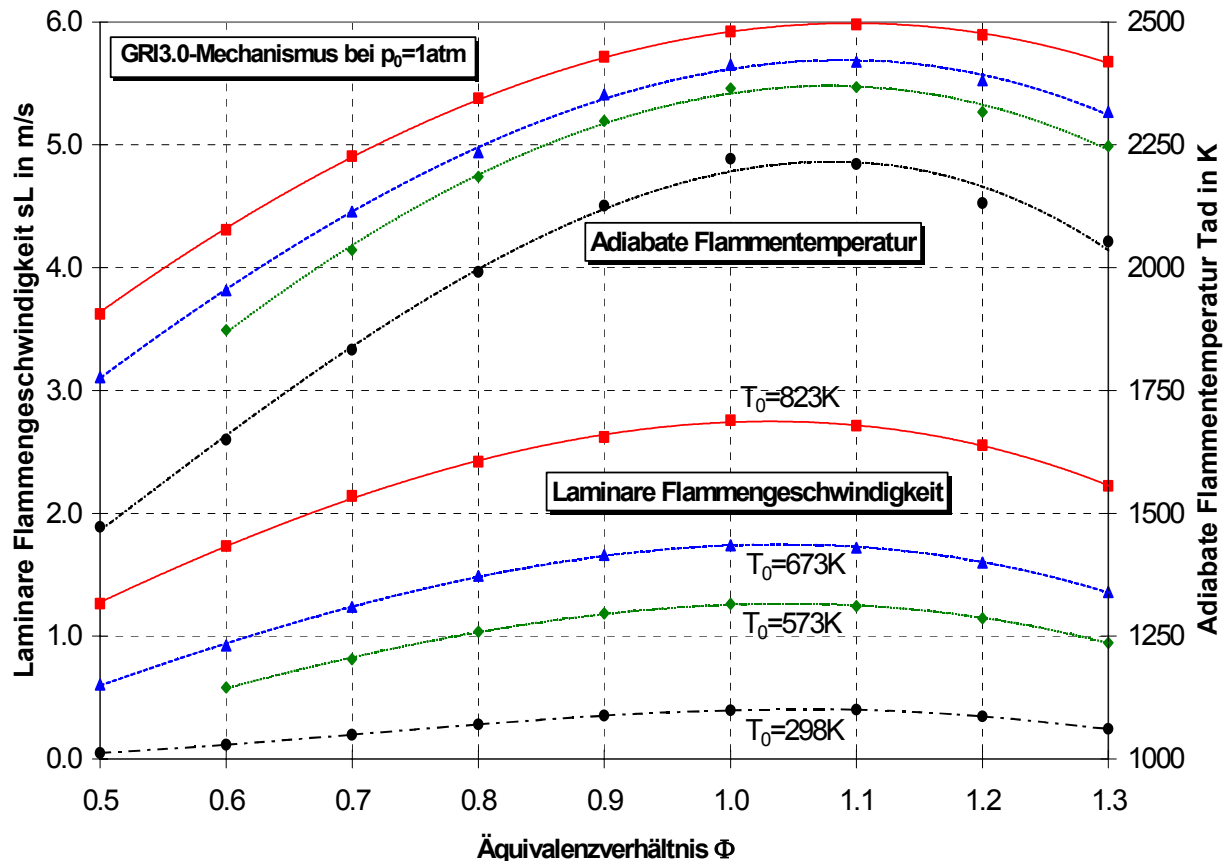


Bild 3: Einfluss des Äquivalenzverhältnisses und der Eintrittstemperatur auf die adiabate Verbrennungstemperatur und die laminare Flammengeschwindigkeit bei atmosphärischem Druck.

Einfluss des Druckes

Der Druckeinfluss auf die laminare Flammengeschwindigkeit in Abhängigkeit von dem Äquivalenzverhältnis Φ ist für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 573 K$ im Bild 4 dargestellt.

Mit steigendem Druck nimmt die laminare Flammengeschwindigkeit ab. Dies ist zunächst überraschend, da nach Gleichung (2) die laminare Flammengeschwindigkeit für Kohlenwasserstoffe mit der Reaktionsordnung von ungefähr zwei eigentlich druckunabhängig sein sollte. Die Druckabhängigkeit ist jedoch auf die bei höheren Drücken wichtiger werdende Reaktion dritter Ordnung



zurückzuführen, die die Wärmefreisetzung verlangsamt [3]. Ausgehend von einem Druck von $p_0 = 1 \text{ atm}$ und stöchiometrischem Gemisch nimmt die laminare Flammengeschwindigkeit für $\Phi = 0.5$ bzw. 1.3 auf 46 % bzw. 75 % ab. Bei $p_0 = 20 \text{ atm}$ sinkt sie für $\Phi = 0.5$ bzw. 1.3 auf 33 % bzw. 63 % ab. Der Einfluss des Äquivalenzverhältnisses auf die laminare Flammengeschwindigkeit nimmt somit mit steigendem Druck zu.

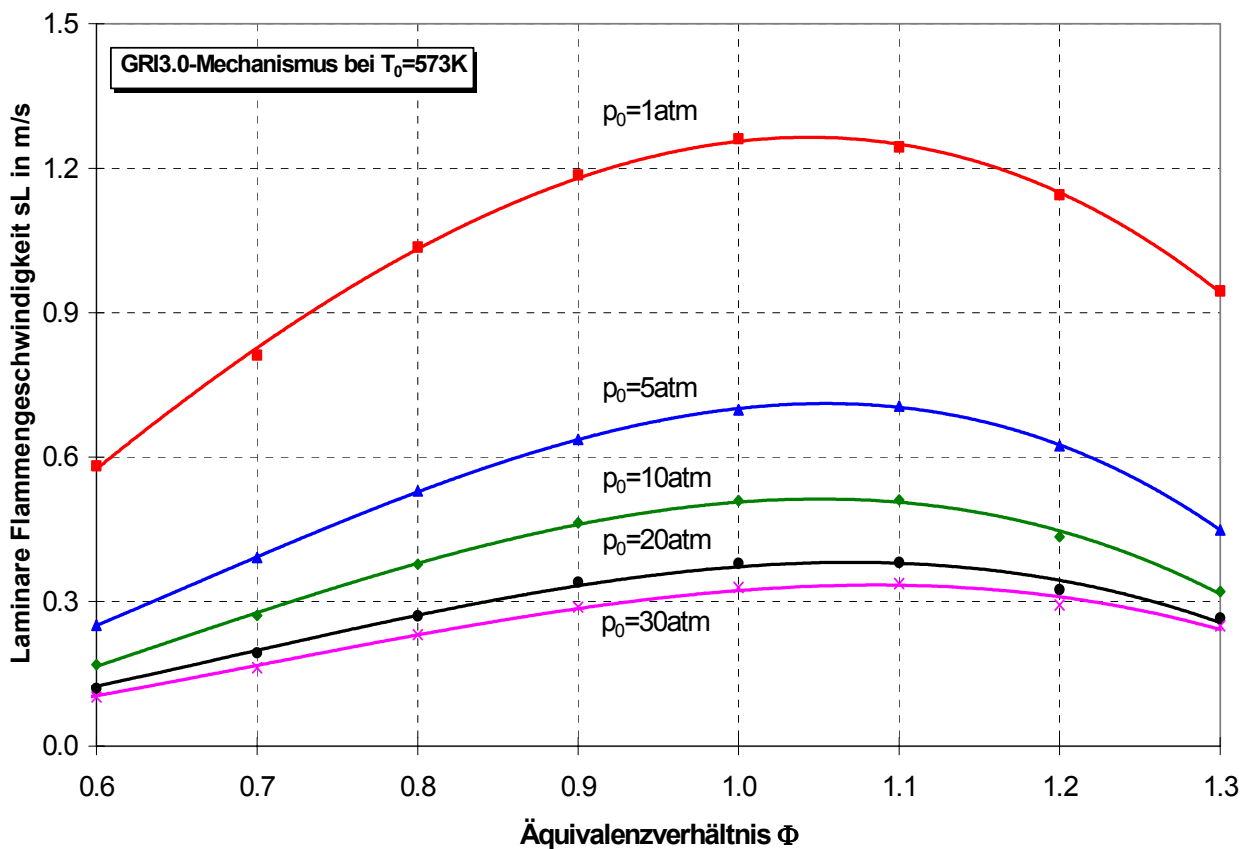


Bild 4. Druckeinfluss auf die laminare Flammgeschwindigkeit bei der Vorwärmtemperatur $T_0 = 573\text{ K}$.

3.1.2 Vergleich numerischer und experimenteller Ergebnisse

Für die Beurteilung der im Kapitel 3.1.1 mit dem GRI3.0-Mechanismus berechneten laminaren Flammgeschwindigkeiten werden im folgenden die Ergebnisse mit Berechnungen mittels C1- und LEEDS1.3-Mechanismus und zusätzlich auch mit experimentellen Ergebnissen verglichen. Ausgehend von dem Vergleich bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1\text{ atm}$, $T_0 = 298\text{ K}$) werden die Resultate auch für höhere Drücke und höhere Eintrittstemperatur diskutiert.

Umgebungsbedingungen

Das Bild 5 zeigt die verschiedenen numerischen und experimentellen Ergebnisse bei $p_0 = 1\text{ atm}$ und $T_0 = 298\text{ K}$. Im Bereich überstöchiometrischer Verbrennung ($\Phi < 1$) stimmen die berechneten Ergebnisse für alle Mechanismen relativ gut überein, dagegen weichen sie im Bereich stöchiometrischer bzw. unterstöchiometrischer Verbrennung ($\Phi > 1$) stärker voneinander ab. Insbesondere die mit dem LEEDS1.3-Mechanismus berechneten laminaren Flammgeschwindigkeiten nehmen mit steigendem Äquivalenzverhältnis schneller ab. Diese Unterschiede im Bereich unterstöchiometrischer Gemische sind auf den unterschiedlichen Aufbau der drei Mechanismen (C₁-, C₂- und C₄-Mechanismus) zurückzuführen. Bei diesen Verbrennungsbedingungen finden aufgrund des Brennstoffüberschusses vermehrt Rekombinationsreaktionen von CH₃-Radikalen statt, wodurch auch höhere C-Verbindungen (vor allem C₂-Verbindungen) an Bedeutung

gewinnen. Die im LEEDS1.3-Mechanismus zusätzlich enthaltenen C_3 - und C_4 -Verbindungen führen vermutlich zu einer Überbewertung dieser Rekombinationsreaktionen und damit zu einer zu niedrigen laminaren Flammengeschwindigkeit.

Im folgenden werden die experimentellen Ergebnisse verschiedener Autoren kurz beschrieben und mit den numerischen Ergebnissen verglichen.

ANDREWS und BRADLEY [11] bestimmten die laminare Flammengeschwindigkeit in einem geschlossenen Explosionskessel mit Hilfe eines Hitzdraht-Anemometers. Die maximale laminare Flammengeschwindigkeit betrug 0.45 ± 0.02 m/s und wurde bei einem Äquivalenzverhältnis von 1.07 gemessen. Diese experimentellen Ergebnisse liegen für überstöchiometrische Gemische um ca. 6 % bis 30 % über den numerischen Berechnungen. Für unterstöchiometrische Gemische ergibt sich die beste Übereinstimmung mit dem C1-Mechanismus (6 % bis 20 % höher).

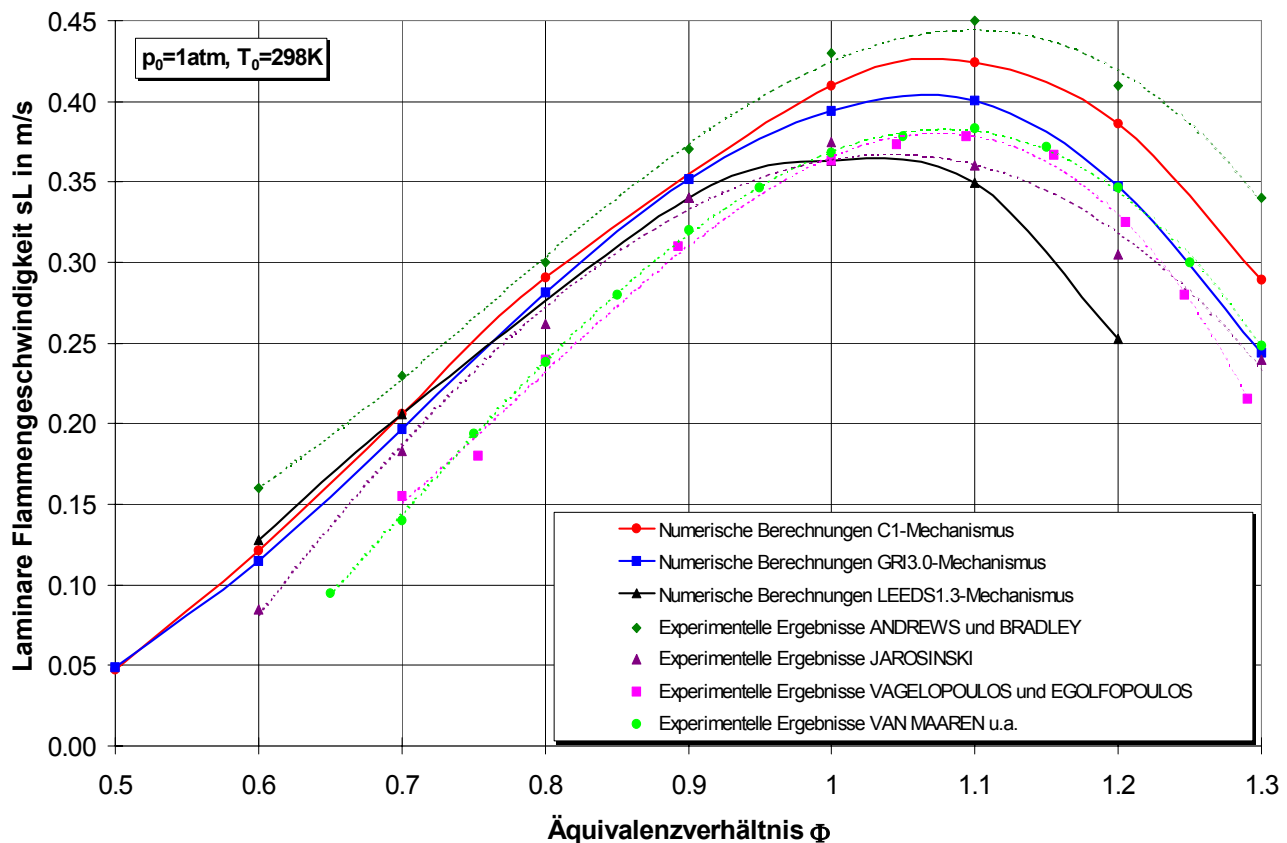


Bild 5: Numerische und experimentelle [11, 12, 13, 14] Ergebnisse für die laminare Flammengeschwindigkeit bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$).

JAROSINSKI [12] ermittelte die laminare Flammengeschwindigkeit in einem vertikalen, quadratischen Kanal ($50 \times 50 \text{ mm}$) mit einer Länge von 1000 mm . Mit Hilfe einer Temperaturmessung mittels Pt-Ir-Drähte an zwei um 220 mm voneinander entfernten Positionen, konnte er die laminare Flammengeschwindigkeit aus der Zeitdifferenz zwischen dem Temperaturanstieg der beiden Drähte und deren Abstand bestimmen. Diese Werte liegen deutlich tiefer als die Ergebnisse von ANDREWS und BRADLEY. Bei $\phi = 1$ beträgt die Differenz 14 % und steigt für $\phi = 1.3$ auf 38 % bzw. $\phi = 0.6$ auf 62 % an. Die Erklärung für diese Unterschiede soll anhand von zwei weiteren experimentellen Untersuchungen erfolgen.

Diese neueren, experimentellen Ergebnisse von EGOLFOPOULOS et al. [13] sowie VAN MAAREN et al. [14] gehen davon aus, dass die bei früheren Untersuchungen nicht berücksichtigten Streckungseffekte unter Umständen zu einer Überschätzung der laminaren Flammengeschwindigkeit führen können. Zur Vermeidung dieser Effekte wurde von beiden ein spezieller Brenneraufbau gewählt. Die Geschwindigkeiten wurden jeweils mit Hilfe der Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) bestimmt.

EGOLFOPOULOS verwendete einen sogenannten „Stauplatten“-Brenner, bei dem in einem bestimmten Abstand zur Stauplatte eine Flamme stabilisiert werden kann. Wird der Abstand zwischen Düse und Stauplatte sehr gross gewählt, so kann bei kleinen Massenströmen eine Bunsenbrennerflamme stabilisiert werden. In Übergangsbereich zwischen positiv gestreckter Stauflamme und negativ gestreckter Bunsenbrennerflamme lässt sich unter bestimmten Bedingungen eine streckungsfreie Vormischflamme stabilisieren.

Von VAN MAAREN wurde ein „Platten“-Brenner verwendet, bei dem die Bohrungen der perforierten Platte in einem hexagonalen Muster angeordnet waren. Die Untersuchungen ergaben, dass für Bohrungsdurchmesser kleiner als 0.55 mm und Geschwindigkeiten unter 0.5 m/s keine Flammenstreckung auftrat. Die Ergebnisse in Bild 5 wurden in einem Brenner ermittelt, dessen Platte 0.5 mm grosse Bohrungen mit einem Bohrungsabstand von $l = 1.2$ mm besass.

Ein Vergleich dieser beiden experimentellen Untersuchungen zeigt, dass für $\Phi < 1.2$ die Werte von VAN MAAREN gut mit denen von EGOLFOPOULOS übereinstimmen. Für $\Phi = 1.2$ bzw. 1.3 liegen die Ergebnisse von VAN MAAREN um 7 % bzw. 20 % über denen von EGOLFOPOULOS. Beide weisen eine relativ gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von JAROSINSKI auf. Die Werte von ANDREWS und BRADLEY dagegen liegen deutlich höher. Vermutlich war der vertikale quadratische Kanal von JAROSINSKI besser zur Stabilisierung von streckungsfreien Vormischflammen geeignet als der Explosionskessel von ANDREWS und BRADLEY.

Die experimentellen Ergebnisse von EGOLFOPOULOS und VAN MAAREN liegen für überstöchiometrische Gemische um 8 % bis 30 % unter den numerischen Ergebnissen. Bei unterstöchiometrischen Gemischen ergibt sich infolge der grossen Streuung der numerischen bzw. experimentellen Ergebnissen kein einheitliches Bild. Bis auf die Ergebnisse von ANDREWS und BRADLEY, die jedoch wie bereits geschildert aufgrund von Streckungseffekten zu hoch sein dürften, stimmen die mit dem GRI3.0-Mechanismus berechneten laminaren Flammengeschwindigkeiten recht gut mit den experimentellen Ergebnissen überein. Die Berechnungen mit dem LEEDS1.3-Mechanismus geben auch gegenüber den experimentellen Ergebnissen für unterstöchiometrische Gemische zu niedrige Flammengeschwindigkeiten. Dies ist, wie schon erwähnt, vermutlich auf die Überbewertung der Rekombinationsreaktionen im LEEDS1.3-Mechanismus zurückzuführen.

Hoher Druck und Umgebungstemperatur

Der Einfluss des Druckes auf die laminare Flammengeschwindigkeit bei stöchiometrischer Verbrennung und einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 298$ K wird anhand von verschiedenen experimentellen Ergebnissen aus der Literatur und eigenen, numerischen (mittels C1- und GRI3.0-Mechanismus) Ergebnissen diskutiert, die alle im Bild 6 dargestellt sind.

AGNEW und GRAIFF [15] ermittelten die laminare Flammengeschwindigkeit im Druckbereich von 0.2 atm bis 20 atm und bei Umgebungstemperatur ($T_0 = 298$ K) in einem

geschlossenen Explosionskessel. EGERTON und LEFEBVRE [16] verwendeten einen horizontalen quadratischen Kanal um die laminare Flammengeschwindigkeit für Drücke von 1 atm bis 9 atm und bei Umgebungstemperatur zu bestimmen. DIEDERICHSEN und WOLFHARD [17] bestimmten die laminare Flammengeschwindigkeit für Drücke von 0.1 atm bis 40 atm bei $T_0 = 293$ K mit einem zylindrischen und rechteckigen Bunsenbrenner.

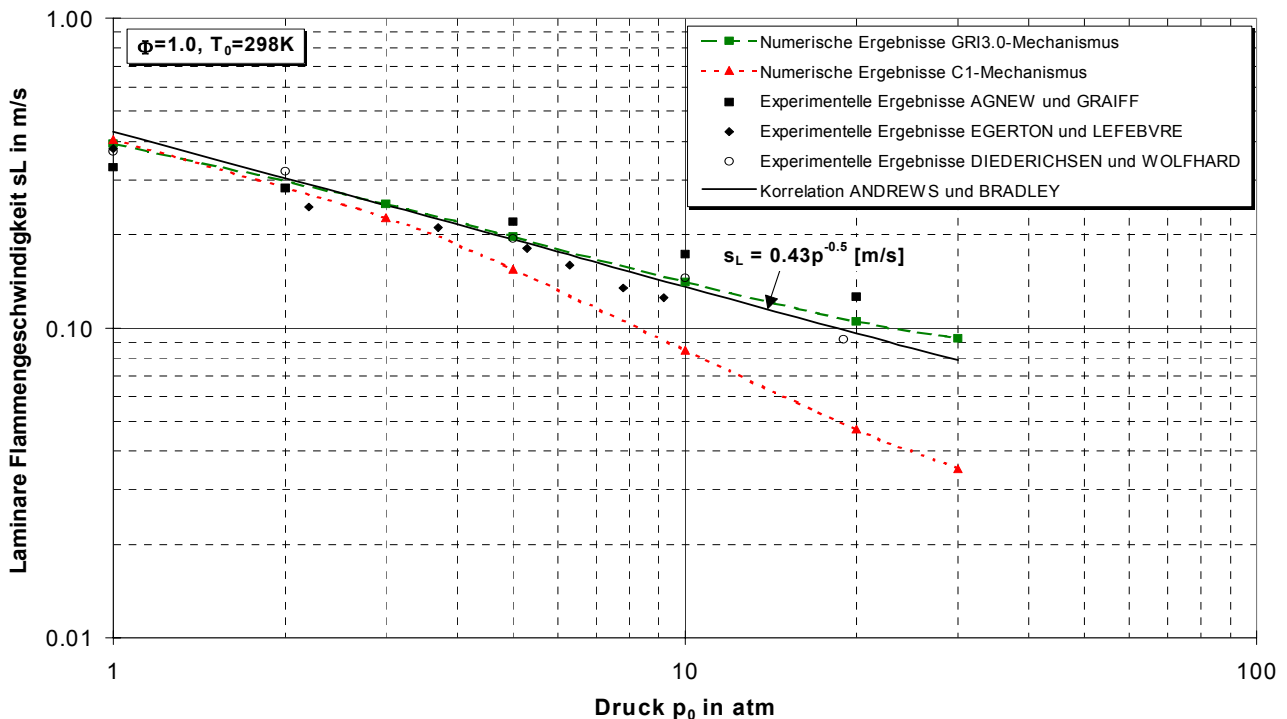


Bild 6: Druckabhängigkeit der laminaren Flammengeschwindigkeit. Vergleich von numerischen und experimentellen [15, 16, 17] Ergebnissen bei stöchiometrischer Verbrennung und einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 298$ K.

ANDREWS und BRADLEY [11] ermittelten aus unterschiedlichen experimentellen Ergebnissen aus der Literatur folgende empirische Korrelation für die Druckabhängigkeit der laminaren Flammengeschwindigkeit von stöchiometrischen CH_4/Luft -Vormischflammen bei $T_0 = 298$ K und $p_0 > 5$ atm, die ebenfalls im Bild 6 eingetragen ist:

$$s_L = 0.43 p_0^{-0.5} \text{ [m/s]}. \quad (7)$$

Der Vergleich der numerischen und experimentellen Ergebnisse zeigt, dass die mit Hilfe des GRI3.0-Mechanismusses berechneten Flammengeschwindigkeiten sehr gut mit den experimentellen Resultaten und der Korrelation von ANDREWS und BRADLEY übereinstimmen.

Die mit Hilfe des C1-Mechanismusses berechneten Flammengeschwindigkeiten stimmen nur bis zu einem Druck von ca. 3 atm mit den experimentellen bzw. mit den mit dem GRI3.0-Mechanismus berechneten Ergebnissen überein. Für höhere Drücke wird die Abweichung immer grösser. Der Grund für diese Abweichungen wird im übernächsten Abschnitt erklärt.

Hoher Druck und hohe Eintrittstemperatur

Numerische und experimentelle Ergebnisse der laminaren Flammgeschwindigkeit in Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 600$ K und drei unterschiedliche Drücke ($p_0 = 1$ atm, 5 atm und 20 atm) sind im Bild 7 dargestellt. Zusätzlich sind auch die mit Hilfe der in Kapitel 3.1.3 angegebenen Korrelation berechneten Flammgeschwindigkeiten eingetragen.

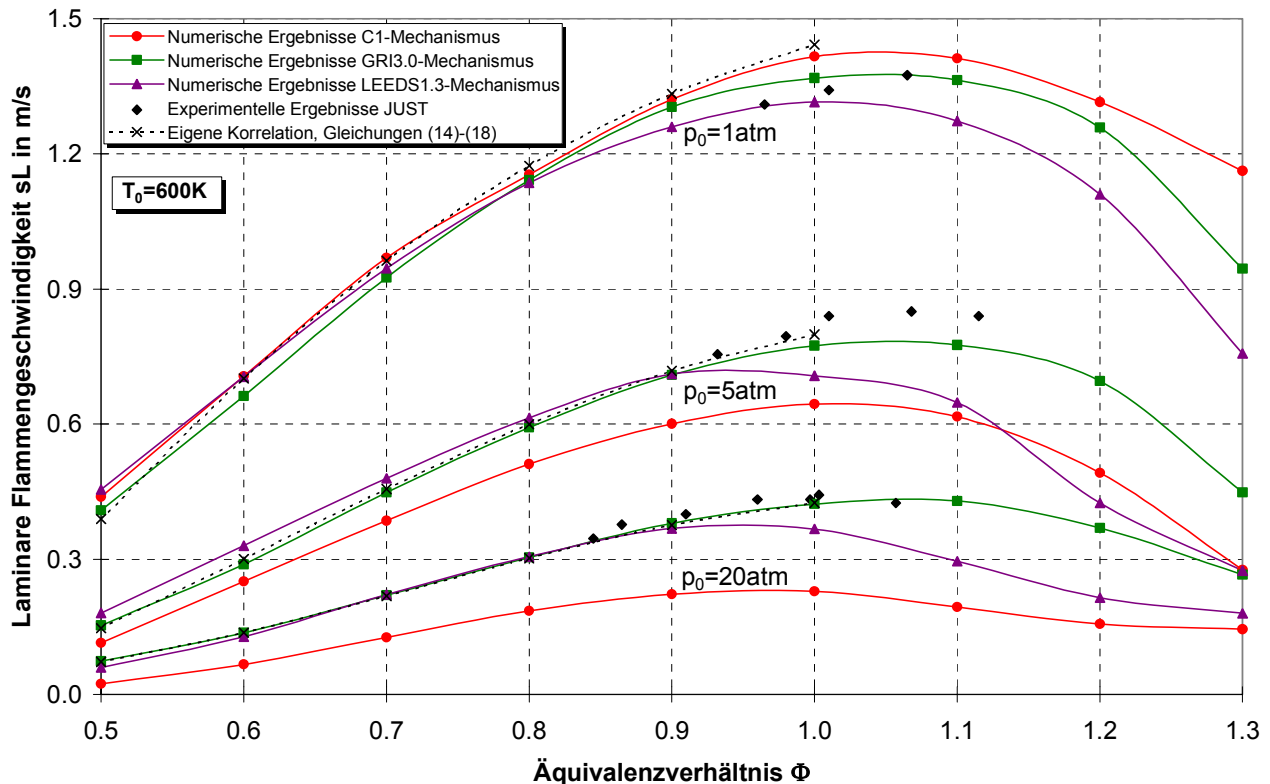


Bild 7: Numerische und experimentelle [21] Ergebnisse für die laminare Flammgeschwindigkeit in Abhängigkeit vom Äquivalenzverhältnis für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 600$ K und drei verschiedene Drücke (1, 5 und 20 atm).

Bei atmosphärischem Druck und höherer Eintrittstemperatur (600 K) stimmen die berechneten laminaren Flammgeschwindigkeiten für überstöchiometrische Gemische genau wie bei den Ergebnissen für Umgebungstemperatur (vgl. Bild 6) für alle Mechanismen relativ gut überein. Im Bereich stöchiometrischer und unterstöchiometrischer Gemische sind die Unterschiede grösser und insbesondere die mit dem LEEDS1.3-Mechanismus berechneten Flammgeschwindigkeiten nehmen bei unterstöchiometrischer Verbrennung mit steigendem Äquivalenzverhältnis schneller ab. Die Erklärung hierfür wurde bereits im Abschnitt Umgebungsbedingungen gegeben.

Bei höherem Druck (5 atm bzw. 20 atm) weichen die mit dem C1-Mechanismus berechneten Ergebnisse stärker von denen der beiden anderen Mechanismen (GRI3.0- und LEEDS1.3-Mechanismus) ab. Bei einem Druck von $p_0 = 5$ atm liegen die mit dem C1-Mechanismus berechneten laminaren Flammgeschwindigkeiten um 15 % bis 65 % unter denen des GRI3.0-Mechanismus. Bei $p_0 = 20$ atm steigen die Unterschiede auf 65 % bis 150 % an. Die Erklärung für diese Unterschiede wird im nächsten Abschnitt gegeben.

Die Berechnungen mit dem LEEDS1.3-Mechanismus stimmen für alle Drücke und Äquivalenzverhältnisse $\Phi < 0.9$ relativ gut mit denen des GRI3.0-Mechanismusses überein. Auffällig ist jedoch, dass von den anderen Mechanismen abweichende Verhalten des LEEDS1.3-Mechanismusses im Bereich stöchiometrischer und unterstöchiometrischer Verbrennung bei Drücken von 5 atm und 20 atm (kein monoton fallender Verlauf). Die maximalen laminaren Flammgeschwindigkeiten treten hier bei leicht überstöchiometrischen Bedingungen ($\Phi \approx 0.9$) und nicht wie erwartet zwischen $\Phi = 1$ und 1.1 auf. Bei höheren Äquivalenzverhältnissen nimmt die Flammgeschwindigkeit relativ schnell ab (bei 5 atm ab $\Phi = 1.1$ bzw. bei 20 atm ab $\Phi = 1.0$). Ab $\Phi \geq 1.2$ nimmt die laminare Flammgeschwindigkeit weniger schnell ab. Da in diesem Projekt nur magere Vormischflammen untersucht werden sollen, wie sie typischerweise in stationären Gasturbinen vorliegen ($\Phi = 0.5 - 0.4$, vgl. Kapitel 1), wurde dieses Verhalten für unterstöchiometrische Gemische nicht näher untersucht.

Experimentelle Untersuchungen zur laminaren Flammgeschwindigkeit von CH_4 /Luft-Vormischflammen bei hohen Eintrittstemperaturen, in denen das Äquivalenzverhältnis und der Druck in einem weiten Bereich variiert wurden, liegen nur wenige vor. GARFORTH und RALLIS [18] untersuchten in einem geschlossenen Explosionskessel stöchiometrische Flammen bei Drücken von $p_0 = 0.6 - 2.28$ atm und Temperaturen von $T_0 = 290 - 525$ K. Ebenfalls in einem geschlossenen Explosionskessel untersuchten BABKIN und KOZACHENKO [19] die laminare Flammgeschwindigkeit bei Äquivalenzverhältnissen von $\Phi = 0.61 - 1.38$, Drücken von $p_0 = 1 - 70$ atm und Temperaturen von $T_0 = 323 - 473$ K. Unter der Berücksichtigung von Streckungseffekten bestimmte GU et al. [20] in einem geschlossenen Explosionskessel die laminare Flammgeschwindigkeit bei verschiedenen Äquivalenzverhältnissen ($\Phi = 0.8 - 1.2$), Drücken ($p_0 = 1 - 10$ atm) und Temperaturen ($T_0 = 300 - 400$ K).

Bisher unveröffentlichte experimentelle Ergebnisse von JUST [21], die aus dem Internet entnommen wurden, sind zum Vergleich ebenfalls im Bild 7 dargestellt. JUST untersuchte CH_4 /Luft-Vormischflammen bei verschiedenen Äquivalenzverhältnissen ($\Phi = 0.75 - 1.25$), Drücken ($p_0 = 1$ atm, 5 atm und 20 atm) und Temperaturen ($T_0 = 320$ K, 400 K, 500 K und 600 K). Diese experimentellen Ergebnisse stimmen relativ gut mit den Berechnungen des GRI3.0-Mechanismusses überein, insbesondere bei dem höchsten Druck von 20 atm. Dies trifft auch für die in der vorliegenden Arbeit nicht dargestellten Ergebnisse bei anderen Vorwärmtemperaturen (320 K, 400 K und 500 K) zu. Allgemein ist jedoch zu beachten, dass für den Bereich von $\Phi = 0.5 - 0.8$ keine experimentellen Ergebnisse von JUST verfügbar sind.

Ursachen für den unterschiedlichen Druckeinfluss

Um die Ursachen für den unterschiedlichen Druckeinfluss des C1- und GRI3.0-Mechanismusses auf die laminare Flammgeschwindigkeit (Bild 6 und 7) zu erklären, sollen im folgenden die beiden Mechanismen miteinander verglichen werden. Dazu werden Sensitivitätsanalysen von JUST [21] herangezogen, in denen er Ergebnisse des GRI3.0-Mechanismusses bei stöchiometrischer Verbrennung, einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 400$ K und Drücke von $p_0 = 4.9$ atm bzw. 19.7 atm und einen Referenzmechanismus mit 53 Spezies und 322 Reaktionen verwendet.

Durch den Vergleich der Reaktionen, die laut der Sensitivitätsanalyse wichtig für die Beschreibung des Druckeinflusses im GRI-3.0-Mechanismus sind, mit denen, die im C1-Mechanismus enthalten sind, wurden die im C1-Mechanismus fehlenden Reaktionen

bestimmt. Diese wurden in den C1-Mechanismus zusätzlich integriert und deren Einfluss auf die laminare Flammengeschwindigkeit bei hohem Druck untersucht. Folgende, nicht im C1-Mechanismus enthaltenen Reaktionen, sind für die Bestimmung der laminaren Flammengeschwindigkeit bei hohen Drücken von Bedeutung:



Die Reaktionen (9) und (11) sind sogenannte trimolekulare Reaktionen, die nach GLASSMAN [3] bei hohen Drücken an Bedeutung gewinnen.

Zusätzlich zur Untersuchung welche Reaktionen fehlen, wurden auch einzelne Reaktionen, die in beiden Mechanismen enthalten und nach der Sensitivitätsanalyse wichtig sind, hinsichtlich ihrer Reaktionskoeffizienten verglichen. Dabei zeigte sich, dass zum Teil deutliche Unterschiede bei den in der Gleichung für den Reaktionskoeffizienten (ARRHENIUS-Ansatz) [3]

$$k(T) = A \cdot T^b \cdot e^{-\frac{E}{R \cdot T}} \quad (12)$$

verwendeten empirischen Grössen Aktivierungsenergie E, Temperaturexponent b und präexponentieller Faktor A bestehen. Einen besonders starken Einfluss auf die laminare Flammengeschwindigkeit hat der Reaktionskoeffizienten der Reaktion



Die empirischen Grössen des Reaktionskoeffizienten für Gleichung (13), die beim jeweiligen Mechanismus verwendet werden, sind in Tabelle 1 gegenübergestellt.

	A	b	E
C1-Mechanismus	5.13E16	-0.816	16507
GRI3.0-Mechanismus	2.65E16	-0.6707	17041

Tabelle 1: Empirische Grössen des Reaktionskoeffizienten für die Reaktion (13) im C1- und GRI3.0-Mechanismus.

3.1.3 Korrelation

Im voranstehenden Kapitel wurde gezeigt, dass für überstöchiometrische Gemische die mit dem GRI3.0-Mechanismus berechneten laminaren Flammengeschwindigkeiten sehr gut mit den experimentellen Ergebnissen aus der Literatur (vgl. Bild 6 und 7) übereinstimmen. Bisher wurde in der Literatur aber keine Korrelation für die laminare Flammengeschwindigkeit angegeben, die bei gasturbinentypischen Bedingungen gültig ist. Aus diesem Grund wurde aus den Ergebnissen der Rechnungen mit dem GRI3.0-Mechanismus zwei Korrelationen entwickelt, mit denen die laminare Flammengeschwindigkeit recht einfach berechnet werden kann. Diese Korrelationen gelten für Eintrittstemperaturen von 473 - 823 K und Äquivalenzverhältnisse im Bereich von

$0.5 \leq \Phi \leq 1.0$. Um eine grössere Genauigkeit bei höheren Drücken zu erzielen, wurde eine Korrelation für den Druckbereich $1 \text{ bar} \leq p_0 < 7 \text{ bar}$ und eine zweite Korrelation für den Druckbereich $7 \text{ bar} \leq p_0 \leq 30 \text{ bar}$ entwickelt.

$$s_L = c \cdot p_0^{-d} \quad (14)$$

Im Druckbereich $1 \text{ bar} \leq p_0 < 7 \text{ bar}$ sind der Faktor c und der Exponent d eine Funktion der Eintrittstemperatur T_0 und des Äquivalenzverhältnisses Φ . Sie können beide anhand der Gleichungen (15) und (16) berechnet werden. Die Genauigkeit der berechneten laminaren Flammgeschwindigkeit beträgt in diesem Druckbereich $\pm 10 \%$.

$$c = (-1.03 \cdot 10^{-2} T_0 + 3.645 \cdot 10^0) \Phi^2 + (-4.12 \cdot 10^{-6} T_0^2 + 2.512 \cdot 10^{-2} T_0 - 7.68 \cdot 10^0) \Phi + (8.78 \cdot 10^{-6} T_0^2 - 1.547 \cdot 10^{-2} T_0 + 4.19 \cdot 10^0) \quad (15)$$

$$d = 7.5 \cdot 10^{-1} \Phi^2 - 1.6 \cdot 10^0 \Phi + 1.337 \cdot 10^0 - 2 \cdot 10^{-4} T_0 \quad (16)$$

Für höhere Drücke ($7 \text{ bar} \leq p_0 \leq 30 \text{ bar}$) lässt sich der Faktor c nach Gleichung (17) berechnen. Der Exponent d ist in diesem Druckbereich konstant und beträgt 0.45.

$$c = (-6.906 \cdot 10^{-5} T_0^2 + 6.875 \cdot 10^{-2} T_0 - 2.513 \cdot 10^{+1}) \Phi^3 + (1.155 \cdot 10^{-4} T_0^2 - 1.1523 \cdot 10^{-1} T_0 + 4.647 \cdot 10^{+1}) \Phi^2 + (-4.185 \cdot 10^{-5} T_0^2 + 4.922 \cdot 10^{-2} T_0 - 2.482 \cdot 10^{+1}) \Phi + (6.57 \cdot 10^{-6} T_0^2 - 9.55 \cdot 10^{-3} T_0 + 5.185 \cdot 10^0) \quad (17)$$

$$d = 0.45 \quad (18)$$

Die Genauigkeit der berechneten laminaren Flammgeschwindigkeiten ist in diesem Druckbereich höher und liegt bei $\pm 7 \%$.

3.2 Laminare Flammenfrontdicke

In den folgenden beiden Kapitel werden die Ergebnisse der laminaren Flammenfrontdicke bei Umgebungsbedingungen und bei hoher Eintrittstemperatur und hohen Drücken diskutiert. Ausgehend von den unterschiedlichen Bestimmungsmöglichkeiten der sogenannten laminaren „Temperatur-Flammenfrontdicke“ anhand des Temperaturprofils werden diese Resultate mit den Ergebnissen anderer Methoden verglichen.

3.2.1 Laminare Temperatur-Flammenfrontdicke

Umgebungsbedingungen

Die laminaren Temperatur-Flammenfrontdicken, die sich aus der Konstruktion der Tangente an den Wendepunkt des Temperaturprofils bzw. anhand des Temperaturanstiegs von 5 % auf 95 % ergeben, sind für atmosphärische Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$) in Abhängigkeit vom Äquivalenzverhältnis im Bild 8 dargestellt und entsprechend ihrer Bestimmungsmethode mit dem Zusatz „Tangente“ bzw. „5%-95%“ gekennzeichnet. Die Temperaturprofile wurden anhand von Berechnungen mit dem GRI3.0-Mechanismus ermittelt, unterscheiden sich jedoch kaum von den Ergebnissen bei Verwendung der anderen Mechanismen.

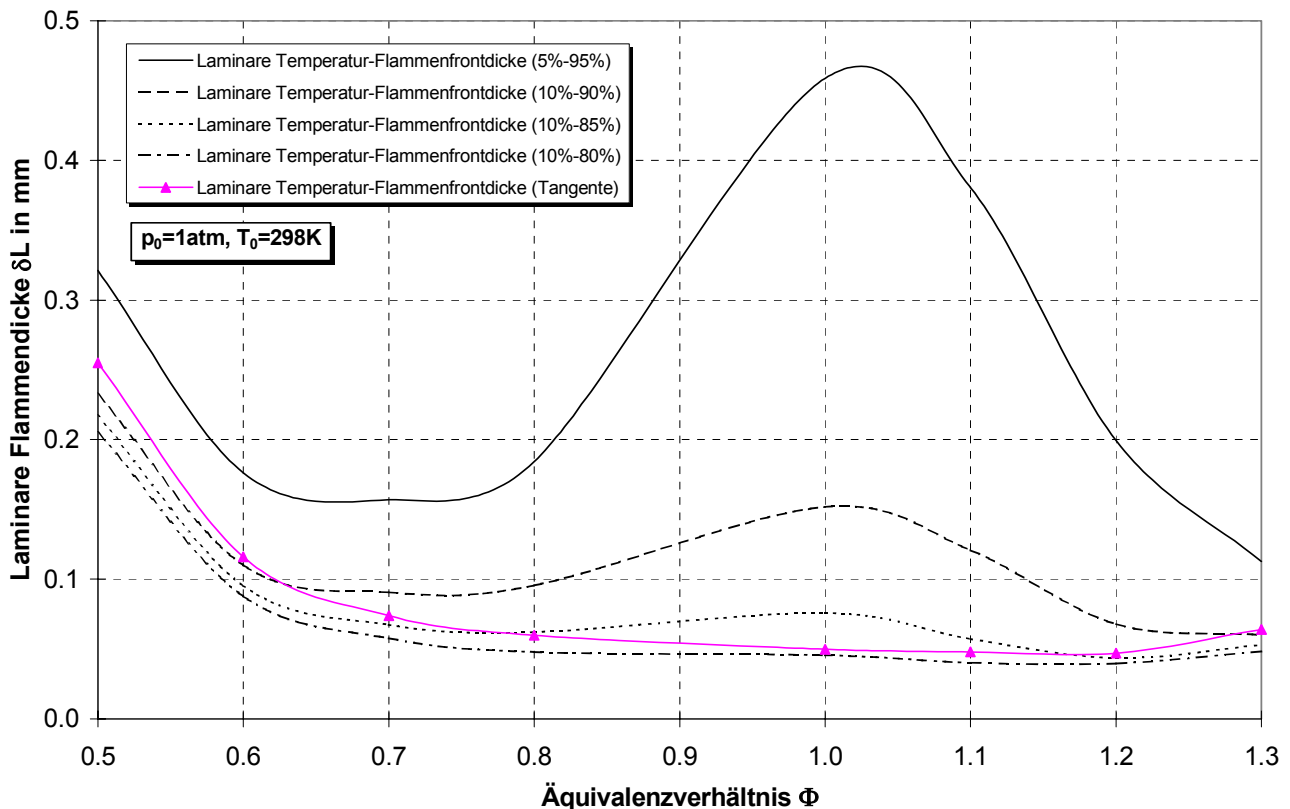


Bild 8: Laminare Temperatur-Flammenfrontdicke bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$) ermittelt anhand verschiedener Bestimmungsmethoden.

Die Resultate der Tangentenmethode zeigen, dass die laminare Temperatur-Flammenfrontdicke (Tangente) bei stöchiometrischem Gemisch ($\Phi = 1.0$) minimal ist und für über- bzw. unterstöchiometrische Gemische zunimmt. Die laminare Flammenfrontdicke ist somit umgekehrt proportional zur laminaren Flammengeschwindigkeit (vgl. Kapitel 3.1.1).

Einen ganz anderen Verlauf zeigen die Ergebnisse der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke (5 % - 95 %). Ausgehend von dem Äquivalenzverhältnis $\Phi = 0.5$ nimmt die laminare Temperatur-Flammenfrontdicke (5 % - 95 %) zunächst bis $\Phi = 0.7$ ab, steigt anschliessend bis zu stöchiometrischen Verbrennungsbedingungen stark an und sinkt für unterstöchiometrischen Bedingungen ($\Phi > 1$) wieder ab. Die maximale laminare Flammenfrontdicke tritt nach dieser Bestimmungsmethode zwischen $\Phi = 1.0$ und 1.1 auf, d. h. bei Äquivalenzverhältnissen, bei denen infolge der maximalen laminaren Flammengeschwindigkeit die minimalen laminaren Flammenfrontdicken erwartet werden. Um diesen unerwarteten Verlauf näher zu untersuchen sind in Bild 8 zusätzlich die laminaren Temperatur-Flammenfrontdicken für andere prozentuale Grenzen des Temperaturanstiegs (von 10 % auf 90 %, 10 % auf 85 % und von 10 % auf 80 %) dargestellt. Auffällig ist, dass mit kleinerer oberer, prozentualer Temperaturgrenze die Maxima bei stöchiometrischen Bedingungen immer weniger ausgeprägt werden. Bei der Bestimmung mit Hilfe der Temperaturgrenzen 10 % bzw. 80 % verschwindet das Maximum völlig und die Ergebnisse stimmen gut mit denen der Tangentenmethode überein.

Die Erklärung für diese starke Abhängigkeit von der oberen Temperaturgrenze soll anhand des Bildes 9 erfolgen, in dem die Temperaturprofile in Abhängigkeit der x-Koordinate für drei verschiedene Äquivalenzverhältnisse ($\Phi = 0.6, 0.8, 1.0$) und bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$) dargestellt sind. Die jeweilige maximale Temperatur (adiabate Flammentemperatur) ist als horizontale Linie ebenfalls eingetragen.

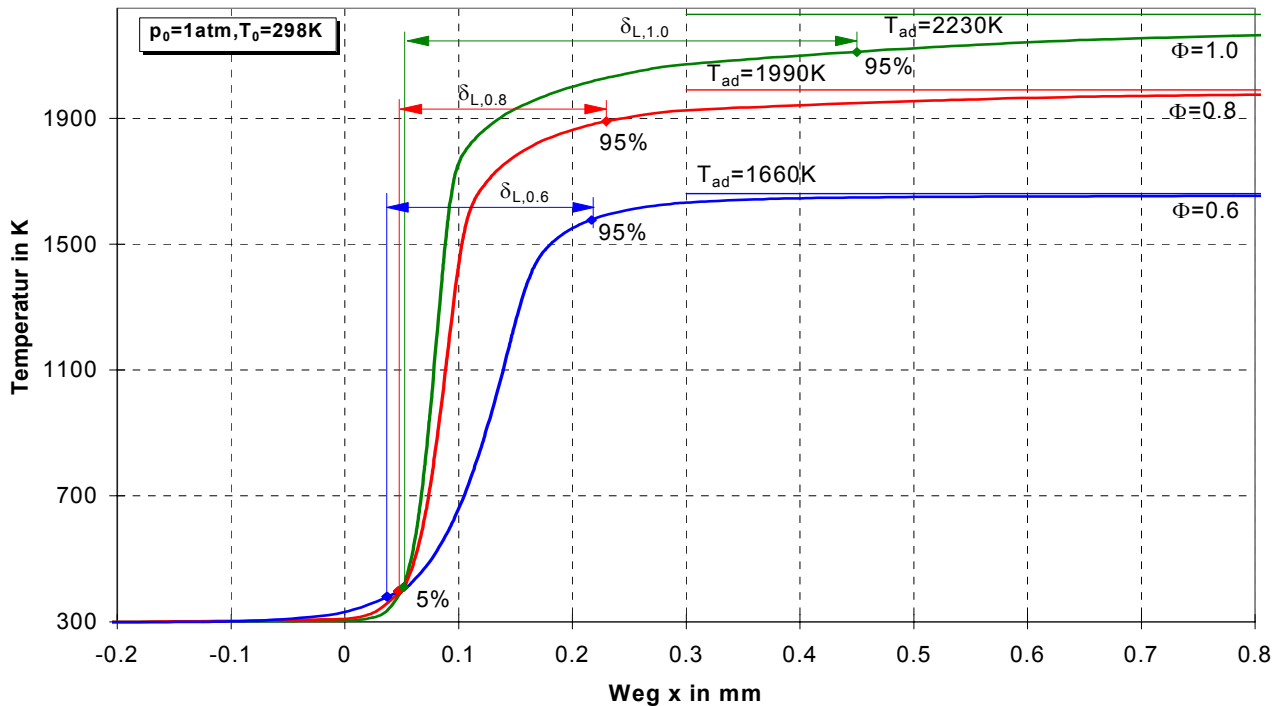


Bild 9: Temperaturprofile, adiabate Flammentemperaturen und laminare Flammenfrontdicke für drei verschiedene Äquivalenzverhältnisse ($\Phi = 0.6, 0.8, 1.0$) und bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$).

Zu Beginn ($x \approx 0-0.1 \text{ mm}$) steigt die Temperatur zunächst sehr stark an. Dieser grosse Temperaturgradient wird mit zunehmender x-Koordinate kleiner und gegen Ende des Temperaturanstiegs ist der Gradient sehr klein, d. h. der Anstieg bis zur adiabaten Flammentemperatur erfolgt nur allmählich. Für $\Phi = 0.6$ wird die adiabate Flammentemperatur bereits nach einem relativ kurzen Weg ($x \approx 0.5 \text{ mm}$) erreicht. Mit steigendem Äquivalenzverhältnis nimmt der Weg bis die adiabate Flammentemperatur erreicht wird zu. Die anhand des Temperaturanstiegs von 5 % auf 95 % bei einem Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 1.0$ ermittelte laminare Flammenfrontdicke $\delta_{L,1.0}$ ist daher gegenüber den laminaren Flammenfrontdicken $\delta_{L,0.6}$ und $\delta_{L,0.8}$ bei $\Phi = 0.6$ bzw. 0.8 sehr viel grösser. Dies zeigt, dass die Verwendung prozentualer Grenzen zur Bestimmung der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke für den Anstieg der Flammenfrontdicke im nahestöchiometrischen Bereich verantwortlich ist und sich die Methode daher nur eingeschränkt zur Bestimmung eignet.

Der langsamere Temperaturanstieg im letzten Abschnitt des Temperaturprofils bei stöchiometrischem Gemisch ist auf die Dissoziation zurückzuführen. Dies wird mit Hilfe des Bildes 10, in dem die Temperaturprofile in Abhängigkeit der x-Koordinate für Drücke von 1, 5 und 20 atm, einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 600 \text{ K}$ und stöchiometrischem Gemisch dargestellt sind, noch näher erklärt.

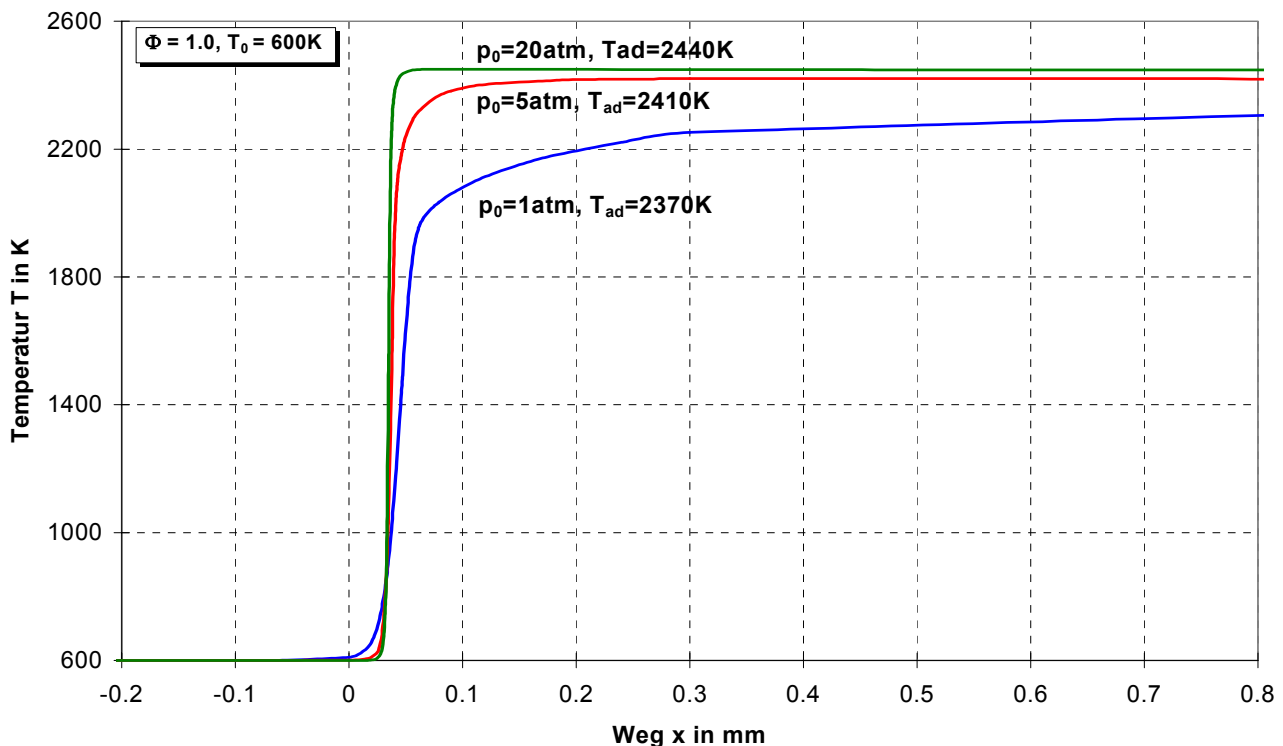


Bild 10: Temperaturprofile für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 600\text{ K}$, stöchiometrisches Gemisch und drei verschiedene Drücke (1, 5, 20 atm).

Die adiabate Flammentemperatur nimmt mit steigendem Druck zu und wird nach einem kürzeren Weg erreicht. Bei hohen Drücken werden, wie im Kapitel 3.1.2 beschrieben, die trimolekularen Reaktionen wichtiger. Diese Rekombinationsreaktionen von Radikalen wirken der Dissoziation entgegen und verringern deren Einfluss bei hohen Drücken. Die Unterdrückung der Dissoziation (endotherme Reaktionen) bei höherem Druck führt somit zu einer höheren Flammentemperatur und dazu, dass diese schneller erreicht wird. Zusätzlich hängt die Dissoziation auch von der Temperatur ab. Bei einem konstanten Druck ist der Einfluss der Dissoziation daher bei stöchiometrischen Bedingungen am grössten. Für unter- bzw. überstöchiometrische Gemische ist die Dissoziation infolge geringerer adiabater Flammentemperatur geringer. Somit wurde gezeigt, dass der allmähliche Anstieg der Temperatur bis auf die adiabaten Flammentemperatur bei stöchiometrischem Gemisch (Bild 9) auf die Dissoziation zurückzuführen ist.

Die voranstehenden Überlegungen ergeben, dass für einen breiten Bereich der Parameter Eintrittstemperatur, Äquivalenzverhältnis und Druck, nur die Konstruktion der Tangente an den Wendepunkt des Temperaturprofils für die Bestimmung der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke geeignet ist. Diese Methode ist jedoch recht aufwendig. Die Bestimmung der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke mit Hilfe von prozentualen Temperaturgrenzen ist nur bei hohen Drücken für einen breiten Bereich von Äquivalenzverhältnissen (unter- bis überstöchiometrische Gemische) anwendbar, da hier die Dissoziation vernachlässigbar ist. Im folgenden werden die Ergebnisse für die laminare Temperatur-Flammenfrontdicke mittels der Tangentenmethode mit den in Kapitel 2.2 beschriebenen weiteren Methoden verglichen.

3.2.2 Vergleich unterschiedlicher Bestimmungsmethoden

Die Diskussion der verschiedenen Bestimmungsmethoden erfolgt zunächst anhand der Ergebnisse bei Umgebungsbedingungen. Im Anschluss daran wird der Vergleich auf höhere Temperaturen und Drücke erweitert.

Umgebungsbedingungen

Im Bild 11 sind neben der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke(Tangente) auch die in Kapitel 2.2 beschriebenen ZELDOVICH-, OH- und CH-Flammenfrontdicken in Abhängigkeit vom Äquivalenzverhältnis und für atmosphärische Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$) dargestellt. Zusätzlich zu den eigenen Ergebnissen, die mit Linien gekennzeichnet wurden, sind auch einige Literaturwerte ([8], [23], [24]) angegeben.

Die laminare CH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,CH}$ ist für stöchiometrische Bedingungen minimal, für über- und unterstöchiometrische Gemische steigt diese leicht an. Bei unterstöchiometrischen Bedingungen stimmt die CH-Flammenfrontdicke relativ gut mit der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke(Tangente) überein. Im überstöchiometrischen Bereich steigen die Werte für die CH-Flammenfrontdicke im Vergleich zur Temperatur-Flammenfrontdicke langsamer an. Bei $\Phi = 0.5$ beträgt der Unterschied zwischen beiden bereits 130 %. Aufgrund der ungenauen Definition der Methode, "merkliche" Zunahme bzw. Abnahme der CH-Konzentration (vgl. Kapitel 2.2.), wäre auch eine Bestimmung über prozentuale Grenzen ähnlich wie bei der Temperatur-Flammenfrontdicke denkbar. Diese führen jedoch genau wie bei der Temperatur-Flammenfrontdicke (s. Kapitel 3.2.1) zu fehlerhaften Werten für die laminare CH-Flammenfrontdicke.

Der Verlauf der laminaren OH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,OH}$ zeigt sowohl im über- als auch im unterstöchiometrischen Bereich keine eindeutige Tendenz. Aufgrund der ungenauen unteren Grenze bei der Bestimmungsmethode ("merkliche" Zunahme der OH-Konzentration) wäre auch wie bei der Temperatur-Flammenfrontdicke eine Bestimmung mittels Tangente bzw. prozentualer Grenzen möglich. Beide Methoden führen zu deutlich niedrigeren Werten für die laminare OH-Flammenfrontdicke und zeigen ebenfalls keine eindeutige Tendenz. Da auch nach der Reaktionszone infolge der hohen Temperaturen, noch sogenanntes "thermisches"-OH in hohen Konzentrationen vorliegt (vgl. Bild 2), eignet sich das OH-Konzentrationsprofil nicht für die Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke.

Die laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke $\delta_{L,Z}$ kann nach Gl. (4) und (5) bestimmt werden. Für die im Bild 11 eingetragene ZELDOVICH-Flammenfrontdicke wurde für den Diffusionskoeffizient D_{G1} der in [22] angegebene Wert $D_{G1} = 0.21 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ für CH_4 in Luft bei $p_1 = 1 \text{ atm}$ und $T_1 = 293 \text{ K}$ verwendet. Nach Gl. (4) ist die laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke für Äquivalenzverhältnisse zwischen 1.0 und 1.1 aufgrund der dort auftretenden maximalen Flammengeschwindigkeit minimal. Für über- und unterstöchiometrische Gemische nimmt die laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke aufgrund der abnehmenden Flammengeschwindigkeit zu. Im Bereich stöchiometrischer Verbrennung ($\Phi = 1.0 - 1.1$) stimmen die Werte der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke (Tangente) und der ZELDOVICH-Flammenfrontdicke sehr gut überein. Bei überstöchiometrischen Bedingungen steigen die Werte für die ZELDOVICH-Flammenfrontdicke schneller an. Für $\Phi = 0.5$ liegen die Werte bereits um 80 % höher.

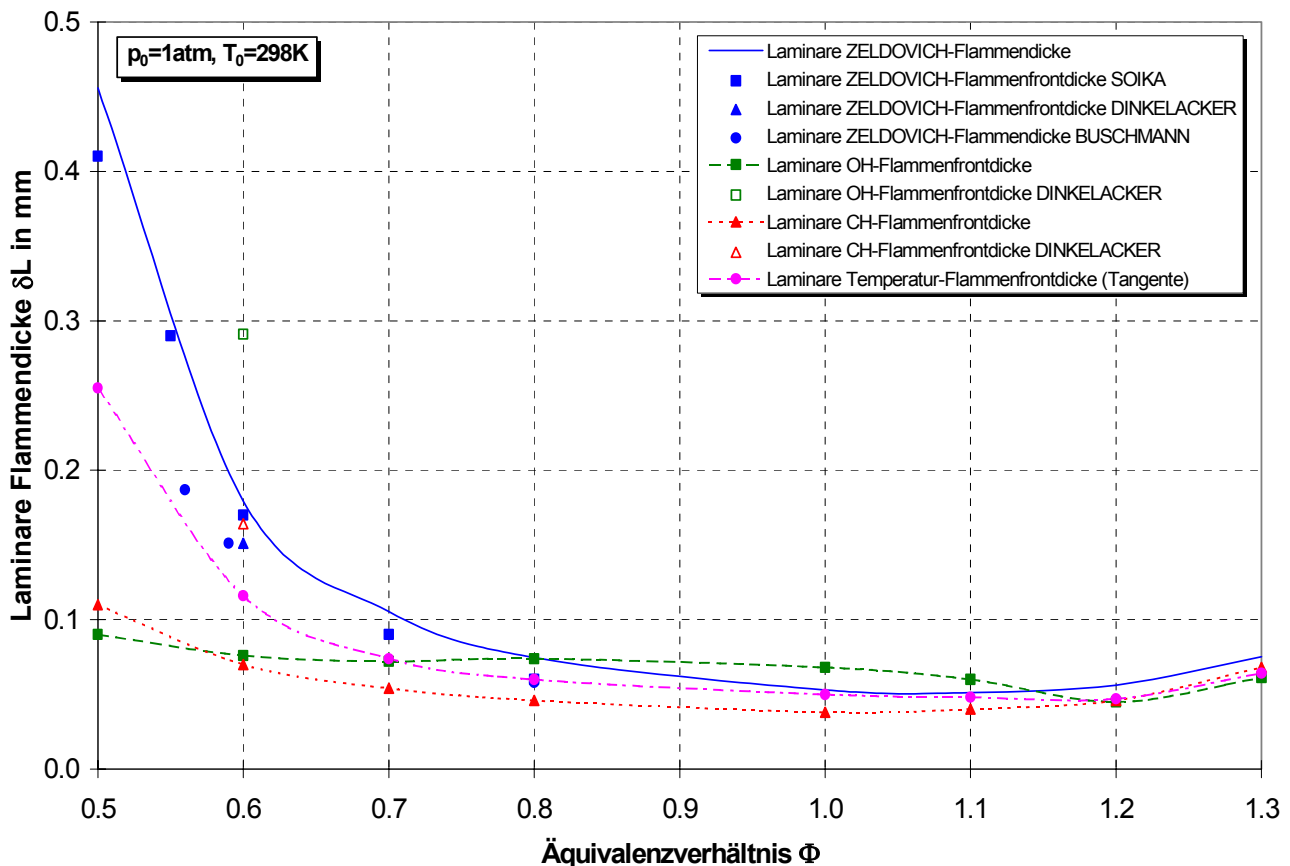


Bild 11: Vergleich der laminaren Temperatur-, ZELDOVICH-, CH- und OH-Flammenfrontdicke eigener Ergebnisse (Linien) mit Literaturwerten ([8], [23], [24]) bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$).

Literaturangaben zu laminaren Flammenfrontdicken sind nur im geringen Umfang vorhanden. DINKELACKER et al. [8] gibt für CH_4/Luft -Vormischflammen bei atmosphärischem Druck und verschiedenen Eintrittstemperaturen Werte für die laminare Temperatur-, CH-, OH- und ZELDOVICH-Flammenfrontdicke an. In den Arbeiten von SOIKA [23] und BUSCHMANN [24] werden Werte für die laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke angegeben. GLASSMAN [3] gibt für stöchiometrische CH_4/Luft -Vormischflammen bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen ($p_0 = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 298 \text{ K}$) eine Temperatur-Flammenfrontdicke von $\delta_{L,T} = 0.85 \text{ mm}$ an. Dieser Wert liegt weit oberhalb der eigenen Ergebnisse. Die eigenen Berechnungen der ZELDOVICH-Flammenfrontdicke stimmen dagegen sehr gut mit den Literaturangaben in [8], [23] und [24] überein.

Ein Vergleich der vier Bestimmungsmethoden zeigt, dass im Bereich unter- und stöchiometrischer Gemische die Temperatur-, CH- und ZELDOVICH-Flammenfrontdicke relativ gut übereinstimmen. Für überstöchiometrische Gemische nehmen die Unterschiede deutlich zu. Das OH-Konzentrationsprofil ist wie bereits erwähnt nicht für die Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke geeignet.

Hoher Druck und hohe Eintrittstemperatur

Im Bild 12 sind die laminare ZELDOVICH- und die Temperatur-Flammenfrontdicke (Tangente) für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 600 \text{ K}$ und drei verschiedene Drücke (1, 5, 20 atm) dargestellt. Die laminare CH-Flammenfrontdicke ist zur Vollständigkeit ebenfalls

eingetragen, obwohl diese Bestimmungsmethode wie bereits erwähnt aufgrund der ungenauen Definition weniger geeignet ist. Die Werte der laminaren CH-Flammenfrontdicke liegen auch bei einer höheren Eintrittstemperatur und höheren Drücken im Vergleich zur laminaren ZELDOVICH- und die Temperatur-Flammenfrontdicke (Tangente) zu niedrig.

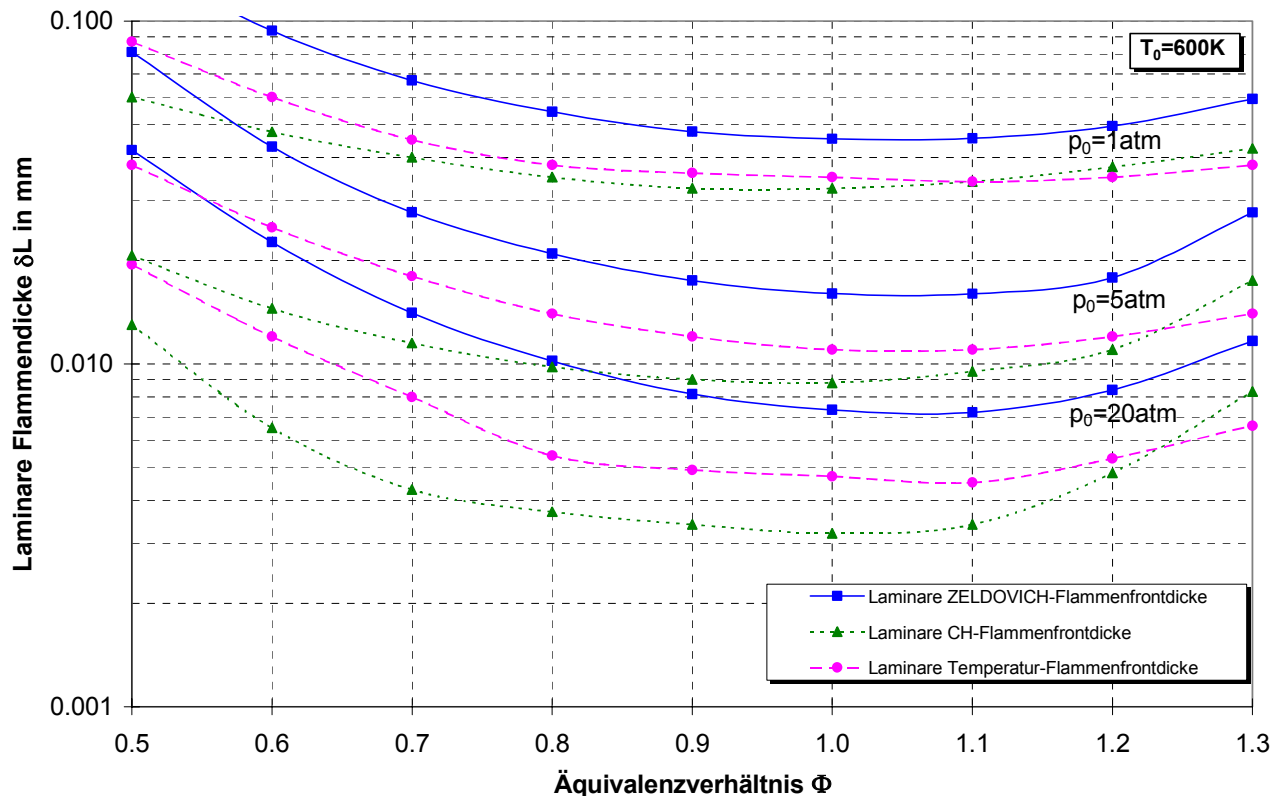


Bild 12: Laminare ZELDOVICH-, CH- und Temperatur-Flammenfrontdicke (Tangente) für eine Eintrittstemperatur von $T_0 = 600 \text{ K}$ und drei verschiedene Drücke (1, 5, 20 atm).

Ähnlich wie bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen liegt die Werte der laminaren ZELDOVICH-Flammenfrontdicke auch bei höherer Eintrittstemperatur und höheren Drücken über denen der Temperatur-Flammenfrontdicke(Tangente). Mit steigendem Druck nehmen die Unterschiede zwischen der ZELDOVICH-Flammenfrontdicke und der Temperatur-Flammenfrontdicke(Tangente) leicht zu. Bei dem Druck von 20 atm und einem Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0.5$ beträgt der Unterschied ca. 50 %. Trotz dieser Unterschiede ist die laminare ZELDOVICH-Flammenfrontdicke aufgrund ihrer einfachen Berechnung und der guten Vergleichbarkeit mit anderen Werten aus der Literatur (keine individuellen Fehler bezüglich Grenzen etc. möglich) sehr vorteilhaft.

Abschliessend sei noch erwähnt, dass die Berechnung des Temperatur- und Konzentrationsprofils auch mit Hilfe der anderen Reaktionsmechanismen durchgeführt wurden. Die sich daraus ergebenden laminaren Flammenfrontdicken unterschieden sich jedoch nicht wesentlich von denen der Rechnungen mit dem GRI3.0-Mechanismus.

4 Schlussfolgerungen

Aus dem Vergleich der eigenen numerischen Berechnungen mit den verschiedenen experimentellen Untersuchungen aus der Literatur zur laminaren Flammengeschwindigkeit und dem Vergleich verschiedener Bestimmungsmethoden für die laminare Flammenfrontdicke ergeben sich folgende Schlussfolgerungen.

Laminare Flammengeschwindigkeit

Atmosphärische Eintrittsbedingungen

1. Die numerischen Ergebnisse der drei Mechanismen (C1-, GRI3.0- und LEEDS1.3-Mechanismus) stimmen bei atmosphärischen Eintrittsbedingungen und überstöchiometrischen Verbrennungsbedingungen gut überein (s. Bild 5). Für Äquivalenzverhältnisse grösser als 0.9 nehmen die Unterschiede zu.
2. Die Übereinstimmung der numerischen Berechnungen mit den experimentellen Ergebnissen ist bei überstöchiometrischen Bedingungen relativ gut. Die maximalen Abweichungen liegen bei ca. 30 %. Für unterstöchiometrische Bedingungen nehmen die Abweichungen deutlich zu (maximal 70 %).

Hoher Druck und hohe Temperatur

3. Bei höheren Drücken sind die mit dem C1-Mechanismus berechneten laminaren Flammengeschwindigkeiten, unabhängig von der Eintrittstemperatur, niedriger als die mit dem GRI3.0- und LEEDS1.3-Mechanismus berechneten Werte (maximal 150 % bei $\Phi = 0.5$, $T_0 = 600$ K und $p_0 = 20$ atm) (Bild 7). Die mit Hilfe des GRI3.0-Mechanismus berechneten Ergebnisse stimmen relativ gut mit experimentellen Resultaten überein.

Vergleich der Mechanismen

4. Der Vergleich des C1- und des GRI3.0-Mechanismus ergibt, dass im C1-Mechanismus einige, bei hohen Drücken wichtige, Reaktionen fehlen (Reaktionen (8) - (11)). Zusätzlich sind die empirischen Grössen Aktivierungsenergie E , Temperatur-exponent b und präexponentieller Faktor A in der Bestimmungsgleichung für den Reaktionskoeffizienten (Gl. (12)) bei einigen der in beiden Mechanismen enthaltenen Reaktionen verschieden. Dies hat insbesondere bei Reaktion (13) einen grossen Einfluss auf die berechnete Flammengeschwindigkeit.

Laminare Flammenfrontdicke

1. Die Bestimmung der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke durch die Konstruktion der Tangente an den Wendepunkt des Temperaturprofils ist für alle Bedingungen (verschiedene Eintrittstemperaturen, Äquivalenzverhältnisse und Drücke) eine geeignete, allerdings auch recht aufwendige Methode.
2. Die Verwendung von prozentualen Temperaturgrenzen (5 % bzw. 95 % bezogen auf die adiabate Flammentemperatur, vgl. Bild 8) ist für die Bestimmung der laminaren Temperatur-Flammenfrontdicke bei atmosphärischem Druck und Äquivalenzverhältnissen von $\Phi = 0.7 - 1.2$ ungeeignet. Aufgrund der Dissoziation und dem damit verbundenen langsamen Anstieg der Temperatur bis auf die adiabate Flammentemperatur sind die so ermittelten Werte zu hoch. Für höhere Drücke kann die laminare Temperatur-Flammenfrontdicke für alle Äquivalenzverhältnisse über den Temperaturanstieg von 5 % auf 95 % bestimmt werden, da der Einfluss der Dissoziation mit steigendem Druck geringer wird (Bild 10).

3. Die Bestimmung der laminare Flammenfrontdicke anhand des CH-Konzentrationsprofils ist aufgrund der ungenauen Definition etwas willkürlich und kann nicht empfohlen werden.
4. Das OH-Konzentrationsprofil eignet sich nicht für die Bestimmung der laminaren Flammenfrontdicke.
5. Die Berechnung der laminaren, sogenannten ZELDOVICH-Flammenfrontdicke anhand von Gl. (4) und (5) stellt eine geeignete und recht einfache Methode dar. Die Resultate liegen oberhalb der Werte, die anhand des Temperatur- oder CH-Konzentrationsprofils ermittelt werden (Bild 11 und 12). Die berechneten laminaren ZELDOVICH-Flammenfrontdicken stimmen gut mit anderen Werten aus der Literatur überein.

5 Literaturverzeichnis

- [1] BORGHI, R.: On the structure and morphology of turbulent premixed flames. Plenum Press, pp. 117-138, 1985.
- [2] MALLARD, E., LE CHATELIER, H. L.: Annales des Mines, vol. 4, pp. 379, 1883.
- [3] GLASSMAN, I.: Combustion. Academic Press, Third Edition, 1996.
- [4] ZELDOVICH, Y. B., FRANK-KAMENETSKY, D. A.: The theory of thermal propagation of flames. Zh Fiz Khim, vol. 12, pp. 100, 1938.
- [5] KEE, R. J., GRCAR, J. F., SMOOKE, M. D., MILLER, J. A.: A Fortran program for modeling steady laminare one-dimensional premixed flames. Sandia Report, SAND85-8240, 1996.
- [6] ABRAHAM, J., WILLIAMS, F. A., BRACCO, F. V.: A discussion of turbulent flame structure in premixed charges. SAE Technical Paper Series, 850345, 1985.
- [7] BOCKHARDT, H.-D., GÜNTZSCHEL, P., POETSCHUKAT, A.: Grundlagen der Verfahrenstechnik für Ingenieure. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1985.
- [8] DINKELACKER, F., SOIKA, A., MOST, D., HOFMANN, D., LEIPERTZ, A., POLIFKE, W., DÖBBELING, K.: Structure of locally quenched highly turbulent lean premixed flames. 27nd Symposium (Int.) on Combustion, pp. 857-865, 1998.
- [9] SMITH, G. P., u. a.: GRI-Mechanismus Version 3.0. Annual Report SRI International, 1999.
http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/
- [10] PILLING, M. J., TURANYI, T., HUGHES, K. J., CLAGUE, A.R.: The Leeds methane oxidation mechanism. Version 1.3, School of Chemistry, The University of Leeds, 1996.
<http://www.chem.leeds.ac.uk/Combustion/Combustion.html>
- [11] ANDREWS, G. E., BRADLEY, D.: The burning velocity of methane-air mixtures. Combustion and Flame, vol. 19, pp. 275-288, 1972.
- [12] JAROSINSKI, J.: Flame quenching by a cold wall. Combustion and Flame, vol. 50, pp. 167-175, 1983.
- [13] VAGELOPOULOS, C. M., EGOLOPOULOS, F. N.: Direct experimental determination of laminare flame speeds. 27nd Symposium (Int.) on Combustion, pp. 513-519, 1998.
- [14] VAN MAAREN, A., THUNG, D. S., DE GOEY, L. P. H.: Measurement of flame temperature and adiabatic burning velocity of methane/air mixtures. Combustion Science and Technology, vol. 96, pp. 327-344, 1994.
- [15] AGNEW, J. T., GRAIFF L. B.: The pressure dependence of laminar burning velocity by the spherical bomb method. Combustion and Flame, vol. 5, pp. 209-219, 1961.

- [16] EGERTON, A. C., LEFEBVRE, A. H.: Proceeding of the Royal Society of London, vol. 222A, pp. 206, 1954.
- [17] DIEDERICHSEN, J., WOLFHARD, H. G.: The burning velocity of methane flames at high pressure. Transactions of the Faraday society, vol. 52, pp. 1102-1109, 1956.
- [18] GARFORTH, A. M., RALLIS, C. J.: Laminar burning velocity of stoichiometric methane-air pressure and temperature dependence. Combustion and Flame, vol. 31, pp. 53-68, 1978.
- [19] BABKIN, V. S., KOZACHENKO, L. S.: Study of normal burning velocity in methane-air mixtures at high pressures. Combustion, Explosion and Shock Waves, vol. 2, no. 3, pp. 46-52, 1966.
- [20] GU, X. J., HAQ, M. Z., LAWES, M., WOOLLEY, R.: Laminar burning velocity and Markstein lengths of methane-air mixtures. Combustion and Flame, vol. 121, pp. 41-58, 2000.
- [21] JUST, Th.: Laminar flame speeds of methane at 1, 5, and 20atm, $F = 0.75$ -1.25, at different cold gas temperatures. 1994.
http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/version30/text30.html
- [22] LANDOLT-BÖRNSTEIN: Zahlenwerte und Funktionen. II. Band, 5. Teil, 1969.
- [23] SOIKA, A., DINKELACKER, F., LEIPERTZ, A.: Measurement of the resolved flame structure of turbulent premixed flames with constant Reynolds number and varied stoichiometry. 27nd Symposium (Int.) on Combustion, pp. 785-792, 1998.
- [24] BUSCHMANN, A., DINKELACKER, F., SCHÄFER, T., SCHÄFER, M., WOLFRUM, J.: Measurement of the instantaneous detailed flame structure in turbulent premixed combustion. 26nd Symposium (Int.) on Combustion, pp. 437-445, 1996.