







Institut für Technische Thermodynamik  
Prof. Dr. rer. nat. U. Maas

# Detaillierte Simulation von Verbrennungsprozessen in Mehrphasensystemen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktors der Ingenieurwissenschaften  
von der Fakultät für Maschinenbau der  
Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

Dissertation

von

Dipl.-Phys. Rainer Stauch  
aus Weil der Stadt

Hauptreferent: Prof. Dr. rer. nat. habil. Ulrich Maas  
Korreferent: Priv.-Doz. Dr.-Ing. habil. Andreas Class

Tag der mündlichen Prüfung: 13.07.2007



Universität Karlsruhe (TH), 2007

**Stauch, Rainer:**

Detallierte Simulation von Verbrennungsprozessen in Mehrphasensystemen

Rainer Stauch. –

Als Ms. gedr.. – Berlin : dissertation.de – Verlag im Internet GmbH, 2007

Zugl.: Karlsruhe, Univ., Diss., 2007

ISBN 978-3-86624-297-5

Bibliografische Information der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

**dissertation.de – Verlag im Internet GmbH 2007**

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen, auf Datenträgern oder im Internet und der Übersetzung, vorbehalten.

Es wird ausschließlich chlorfrei gebleichtes  
Papier (TCF) nach DIN-ISO 9706 verwendet.  
Printed in Germany.

dissertation.de - Verlag im Internet GmbH  
Pestalozzistraße 9  
10625 Berlin

URL: <http://www.dissertation.de>

# Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	V
Tabellenverzeichnis	XIII
Abstract	XV
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation . . . . .	2
1.2 Phänomenologie . . . . .	5
1.3 Zielsetzung . . . . .	6
<b>2 Physikalische und chemische Grundlagen</b>	<b>9</b>
2.1 Die Erhaltungsgleichungen . . . . .	9
2.1.1 Erhaltungsgleichungen in den homogenen Phasen . . . . .	10
2.1.2 Erhaltungsgleichungen an der Phasengrenzfläche . . . . .	11
2.2 Transportvorgänge . . . . .	15
2.2.1 Das Newtonsche Schubspannungsgesetz . . . . .	15
2.2.2 Das Fouriersche Wärmeleitungsgesetz . . . . .	16
2.2.3 Das Ficksche Gesetz . . . . .	16
2.2.4 Das ideale Gasgesetz . . . . .	17
2.2.5 Die chemischen Produktionsterme . . . . .	18
2.3 Stoffeigenschaften . . . . .	19
2.3.1 Stoffeigenschaften in der Gasphase . . . . .	20
2.3.2 Stoffeigenschaften in der Flüssigphase . . . . .	20
2.3.3 Stoffeigenschaften an der Phasengrenze . . . . .	25
2.4 Modellierung der Flüssigphase . . . . .	27
<b>3 Numerische Simulation</b>	<b>29</b>
3.1 Eindimensionale instationäre Verbrennungsprozesse . . . . .	29
3.2 Zweidimensionale instationäre Verbrennungsprozesse . . . . .	33
3.3 Innere Zirkulation - "Internal Mixing" . . . . .	37

---

<b>4</b>	<b>Verbrennung von Einzeltropfen</b>	<b>41</b>
4.1	Vergleiche mit anderen Arbeiten . . . . .	42
4.2	Vergleich verschiedener Brennstoffe . . . . .	47
4.3	Untersuchung verschiedener Zündmodi . . . . .	50
4.4	Einfluss des Tropfenradius auf den Zündprozess . . . . .	53
4.5	Einfluss einer Vorverdampfung auf den Zündprozess . . . . .	60
4.6	Einfluss der Tropfentemperatur auf den Verbrennungsprozess . . . . .	63
4.7	Einfluss des Drucks auf den Zündprozess . . . . .	68
4.8	Einfluss der inneren Zirkulation auf den Zündprozess . . . . .	71
4.9	Untersuchung des lokalen Zustands am Zündort . . . . .	73
4.10	Einfluss von Umgebungsparametern auf die Flammenstruktur . . . . .	81
<b>5</b>	<b>Verbrennung von Multikomponenten-Tropfen</b>	<b>87</b>
5.1	Verbrennung von Alkohol/Wassertropfen . . . . .	87
5.2	Verbrennung von n-Heptan/iso-Oktantropfen . . . . .	94
<b>6</b>	<b>Verbrennung von Tropfen in einer äußeren Gasströmung</b>	<b>105</b>
6.1	Validierung des Simulationstools . . . . .	105
6.2	Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Zündprozess . . . . .	107
6.3	Einfluss einer Relativbeschleunigung auf den Zündprozess . . . . .	114
6.4	Analyse der Bedingungen am Zündort . . . . .	117
6.5	Einfluss der Geschwindigkeit auf die Flammenstruktur . . . . .	121
<b>7</b>	<b>Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels</b>	<b>127</b>
7.1	Einfluss des Partikelradius . . . . .	128
7.2	Einfluss der Wärmestrahlung . . . . .	134
7.3	Einfluss des Drucks . . . . .	136
7.4	Einfluss der Wasserkonzentration . . . . .	137
7.5	Einfluss der Sauerstoffkonzentration . . . . .	138
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>141</b>
<b>A</b>	<b>Zündung und Verbrennung von Ethanol/Wassertropfen</b>	<b>145</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>149</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Primärenergieverbrauch von Deutschland [8] . . . . .	1
1.2	Primärenergieverbrauch weltweit [14] . . . . .	2
1.3	Illustration der verschiedenen Zündmodi von Kraftstoffsprays [4] . . . . .	3
1.4	Illustration der verschiedenen Verbrennungsmodi von Kraftstoffsprays in Abhängigkeit des Abstands und der Anzahl der Tropfen [20] . . . . .	4
1.5	Charakteristische Zeitskalen der physikalischen und chemischen Prozesse sowie typische Zündverzugszeiten und motorische Zeitskalen . . . . .	6
2.1	Illustration des lokalen Phasengleichgewichts an der Phasengrenzfläche . . . . .	11
3.1	Modell des instationären eindimensionalen Verbrennungsprozesses im Fall eines Tropfens . . . . .	30
3.2	Modell der instationären zweidimensionalen Verbrennungsprozesse im Fall eines Tropfens . . . . .	34
3.3	Rechengebiet und zugehörige Ränder für den Fall des zweidimensionalen Verbrennungsprozesses eines Tropfens . . . . .	35
3.4	Zirkulierende Strömung im Innern des Tropfens (“Hill’s vortex“) . . . . .	38
3.5	Abhängigkeit des Faktors zur Bestimmung der effektiven Transportkoeffizienten von der Pecletzahl . . . . .	39
4.1	Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines Methanoltropfens in verschiedenen Gasatmosphären ( $p = 1.01$ bar, $r_D(0) = 500 \mu\text{m}$ , $T_g = 300$ K, $T_D(0) = 300$ K) . . . . .	42
4.2	Zeitliche Variation der Verdunstungskonstante $K$ ( $p = 1.01$ bar, $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ , $T_g = 300$ K, $T_D(0) = 300$ K) . . . . .	44
4.3	Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines Heptantropfens ( $p = 1.00$ bar, $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ ) . . . . .	45
4.4	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für einen Heptantropfen ( $p = 1.01$ bar, $r_D(0) = 660 \mu\text{m}$ ) . . . . .	47
4.5	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Temperatur für verschiedene Brennstoffe bei homogener Mischung ( $p = 8$ bar, $\lambda = 1$ ) . . . . .	48

4.6	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für Einzeltropfen aus verschiedenen Brennstoffen ( $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ , $T_D(0) = 384$ K)	48
4.7	Zeitliche Evolution der maximalen Gastemperatur bei einer kalten Flamme (links, $p = 1$ bar) und einer zweistufigen Zündung (rechts, $p = 5$ bar) (n-Heptan, $T_g(0) = 640$ K, $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )	51
4.8	Schematisches p-T-Explosionsdiagramm für Kohlenwasserstoffe [138]	51
4.9	Verschiedene Zündmodi von Heptantropfen bei unterschiedlichen Drücken und Temperaturen (Punkte: Simulation (INSFLA), Flächen: Experiment (Tanabe et al. [128]); $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )	52
4.10	Arrheniusdiagramm der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur unterschiedlicher Tropfenradien ( $p = 8$ bar, $T_D(0) = 384$ K)	53
4.11	Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius ( $T_g = 1250$ K, $p = 8$ bar, n-Heptan: $T_D(0) = 384$ K, Methanol: $T_D(0) = 300$ K)	55
4.12	Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius (n-Heptan, $T_g = 769$ K, $p = 8$ bar)	56
4.13	Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan, $T_g = 769$ K, $p = 8$ bar, $\Phi = 0.22$ )	58
4.14	Zeitliche Evolution der maximalen Flammentemperatur eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan, $T_g = 769$ K, $p = 8$ bar, $\Phi = 0.22$ )	59
4.15	Abhängigkeit der Stickoxidbildung vom Tropfenradius eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan, $T_g = 769$ K, $p = 8$ bar, $\Phi = 0.22$ )	60
4.16	Zwei verschiedene Anfangsbedingungen: kein gasförmiges n-Heptan (—, INI1), vorverdampftes n-Heptan (- - -, INI2)	61
4.17	Arrheniusdiagramm der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für zwei verschiedene Anfangsbedingungen (INI1, INI2, n-Heptan, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ , homogene Gasphase $\lambda = 1$ )	62
4.18	Identifizierung der Aufheizphase und der Verdunstungsphase anhand des zeitlichen Verlaufs der Oberflächentemperatur (Methanol, $p = 3$ bar, $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ , $T_g = 1000$ K, $T_D(0) = 300$ K)	63
4.19	Abhängigkeit der normierten Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen (Methanol, $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )	64
4.20	Abhängigkeit der normierten Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen ( $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )	65
4.21	Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur für verschiedene anfängliche Tropfentemperaturen (Methanol, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ , $T_g = 1000$ K)	66
4.22	Korrelationen der Oberflächentemperatur (links) und der Temperatur im Zentrum des Tropfens (rechts) mit dem Tropfenradius (Methanol, $p = 8$ bar, $T_g = 1000$ K)	67

4.23	Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Umgebungsdruck (n-Heptan, $T_g = 1200$ K) . . . . .	69
4.24	Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Druck bei verschiedenen Gastemperaturen (n-Heptan, $r_D(0) = 350$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	70
4.25	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von innerer Zirkulation (n-Heptan, $p = 1.01$ bar, $r_D(0) = 660$ $\mu\text{m}$ , $T_D(0) = 298$ K) . . . . .	72
4.26	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von Methanol/Wassertropfen von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von innerer Zirkulation ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu\text{m}$ , $T_D(0) = 342$ K) . . . . .	73
4.27	Radiale Profile der Temperatur sowie der Molenbrüche von n-Heptan, Sauerstoff und OH während der Zündung (n-Heptan, $p = 8$ bar, $T_g = 1250$ K, $r_D(0) = 200$ $\mu\text{m}$ , $T_D(0) = 384$ K, $t = 4.274$ ms) . . . . .	74
4.28	Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur bei der Zündung für n-Heptan und Methanol bei verschiedenen Umgebungsbedingungen . . . . .	75
4.29	Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur im Fall der Hochtemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan, $d_D(0) = 700$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	76
4.30	Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur im Fall der Niedertemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan, $d_D(0) = 700$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	77
4.31	Abhängigkeit des Zündradius von der Gastemperatur im Fall der Niedertemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan, $d_D(0) = 700$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	78
4.32	Abhängigkeit des Zündradius von der Gastemperatur im Fall der Hochtemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan, $d_D(0) = 700$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	78
4.33	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch für zwei verschiedene Gastemperaturen (n-Heptan, $p = 8$ bar, $d_D(0) = 700$ $\mu\text{m}$ ) . . . . .	80
4.34	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets ( $p = 1$ bar, $T_g = 300$ K) . . . . .	82
4.35	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets ( $p = 1$ bar, $T_g = 300$ K) . . . . .	83
4.36	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets für verschiedene anfängliche Tropfenradien ( $p = 8$ bar, $T_g = 1000$ K) . . . . .	85
4.37	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets für verschiedene Umgebungsdrücke ( $T_g = 1200$ K) . . . . .	85

5.1	Zeitliche Evolution des Durchmessers eines reinen Methanoltropfens sowie mit einem Wassergehalt von 10 Massenprozent ( $p = 1$ bar, $d_D(0) = 3$ mm, $T_g = 300$ K, $T_D(0) = 300$ K) . . . . .	88
5.2	Zeitliche Evolution des Durchmessers eines Methanol/Wassertropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen von Methanol und Wasser ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_g = 1250$ K, $T_D(0) = 342$ K) . . . . .	89
5.3	Abhängigkeit der Brennkonstante vom Mischungsverhältnis für den Fall brennender Methanol/Wassertropfen und Ethanol/Wassertropfen bei verschiedenen Gastemperaturen ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 342$ K) . . . . .	90
5.4	Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von Methanol/Wassertropfen ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 342$ K) . . . . .	90
5.5	Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanol/Wassertropfens vom Mischungsverhältnis ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 342$ K) . . . . .	91
5.6	Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines Methanol/Wassertropfens ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 342$ K, $T_g = 1250$ K) . . . . .	92
5.7	Zeitliche Evolution der Massenbrüche $w$ sowie der Anteile $\epsilon$ der einzelnen Spezies am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines Methanol/Wassertropfens (70 % vol. Methanol, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 342$ K, $T_g = 1250$ K) . . . . .	93
5.8	Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines n-Heptan/iso-Oktantropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen ( $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 384$ K, $T_g = 909$ K) . . . . .	95
5.9	Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von n-Heptan/iso-Oktantropfen ( $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 384$ K) . . . . .	96
5.10	Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines n-Heptan/iso-Oktantropfens für verschiedene Oktanzahlen ( $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_g = 909$ K, $T_D(0) = 384$ K) . . . . .	97
5.11	Zeitliche Evolution des Massenbruchs $w$ sowie des Anteils $\epsilon$ von n-Heptan am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines n-Heptan/iso-Oktantropfens (Oktanzahl 50, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $T_D(0) = 384$ K) . . . . .	98
5.12	Profile des Molenbruchs von n-Heptan im Innern des Tropfens ( $t = 0.1$ s, $T_g = 1000$ K, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	101
5.13	Zeitliche Evolution der Temperatur an der Oberfläche (oben) und im Mittelpunkt (unten) des Tropfens ( $T_g = 1000$ K, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	102
5.14	Zeitliche Evolution des Massenbruchs der flüssigen Phase $w$ an der Oberfläche (oben) sowie des Anteils $\epsilon$ (unten) von n-Heptan am verdunstenden Gesamtmassenstrom ( $T_g = 1000$ K, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	103
5.15	Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers ( $T_g = 1000$ K, $p = 8$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	104

6.1	Radiale Profile der Temperatur (links) und des Massenbruchs von Methanol zu zwei verschiedenen Zeitpunkten ( $t_1 = 6.0$ ms, $t_2 = 8.7$ ms, $T_g = 1400$ K, $p = 8$ bar) . . . . .	106
6.2	Radiale Profile der Temperatur der Simulationen mit INSFLA, FLAME2D und FLAME2D mit doppelter Gitterpunktanzahl (2xGRID) ( $t = 8.7$ ms, $T_g = 1400$ K, $p = 8$ bar) . . . . .	107
6.3	Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanoltropfens von der Reynoldszahl der äußeren Gasströmung ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	108
6.4	Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit von der Reynoldszahl für verschiedene Damköhlerzahlen . . . . .	110
6.5	Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit eines Methanoltropfens von der Reynoldszahl ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	111
6.6	Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit eines Heptantropfens von der Reynoldszahl ( $p = 7$ bar) . . . . .	111
6.7	Räumliche Profile der Temperatur und des Massenbruchs des Sauerstoffs entlang der x-Achse stromaufwärts (gekennzeichnete Linie) ( $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $t = 2$ ms) . . . . .	113
6.8	Strömungsfeld einer äußeren Gasströmung in der Umgebung des Tropfens ( $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $t = 2$ ms) . . . . .	115
6.9	Projektion des Zustandsraums auf die Temperatur-CH <sub>3</sub> OH-Massenbruch-Ebene ( $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $v = 0.1$ m/s, $t = 2$ ms) . . . . .	115
6.10	Modell des simulierten Systems unter Berücksichtigung einer Relativbeschleunigung von Tropfen und umgebender Gasphase . . . . .	116
6.11	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit von Tropfen und Gasphase (mit und ohne Einfluss einer Relativbeschleunigung) (Methanol, $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	116
6.12	Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit von Tropfen und Gasphase (mit und ohne Einfluss einer Relativbeschleunigung) (n-Heptan, $T_g = 1200$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 100$ $\mu$ m) . . . . .	117
6.13	Abhängigkeit des lokalen Äquivalenzverhältnisses am Zündort von der Relativgeschwindigkeit ( $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	118
6.14	Verschiebung der Lage des Zündorts mit zunehmender Relativgeschwindigkeit (Methanol, $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m) . . . . .	119
6.15	Verschiebung der Lage des Zündorts mit zunehmender Relativgeschwindigkeit (n-Heptan, $T_g = 1200$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 100$ $\mu$ m) . . . . .	119
6.16	Fortpflanzung der Reaktionszone nach der Zündung stromabwärts des Tropfens (Methanol, $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu$ m, $v = 3$ m/s, links: $t_1 = 2.80$ ms, Mitte: $t_2 = 2.92$ ms, rechts: $t_3 = 3.04$ ms) . . . . .	120

6.17	Veränderung der Flammenstruktur bei ansteigender Geschwindigkeit der Gasströmung (Methanol, $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu\text{m}$ , $t = 9$ ms, Strömung von links nach rechts) . . . . .	122
6.18	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten ( $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu\text{m}$ , $t = 9$ ms) . . . . .	123
6.19	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten stromaufwärts des Tropfens ( $T_g = 1400$ K, $p = 7$ bar, $r_D(0) = 200$ $\mu\text{m}$ , $t = 9$ ms) . . . . .	124
6.20	Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Gegenstrom-Flamelets für verschiedene Streckungsraten (Methanol, $p = 7$ bar) . . . . .	124
7.1	Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur und der Brennrate ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1400$ K, $r_{part}(0) = 250$ $\mu\text{m}$ , 2 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	128
7.2	Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser für drei verschiedene Anfangsdurchmesser ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ )	129
7.3	Abhängigkeit der Oberflächentemperatur vom Partikeldurchmesser für drei verschiedene Anfangsdurchmesser ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	130
7.4	Zeitliche Evolution des Partikeldurchmessers ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	131
7.5	Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser für den Transportkontrollierten und den Kinetik-kontrollierten Grenzfall ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	132
7.6	Vergleich der räumlichen Profile von $\text{O}_2$ und $\text{CO}$ in der Grenzschicht des Partikels ( $r_{part} = 100$ $\mu\text{m}$ , $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	133
7.7	Vergleich der Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser ( $p = 1.01$ bar, $T_g = 1650$ K, 12 % $\text{O}_2$ , 72 % $\text{N}_2$ , 16 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	133
7.8	Abhängigkeit der Oberflächentemperatur des Partikels von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von Wärmestrahlung ( $p = 1.01$ bar, $d_{part}(0) = 400$ $\mu\text{m}$ , 1 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	134
7.9	Abhängigkeit der Brennrate des Partikels von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von Wärmestrahlung ( $p = 1.01$ bar, $d_{part}(0) = 400$ $\mu\text{m}$ , 1 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	135
7.10	Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate vom Umgebungsdruck ( $d_{part} = 100$ $\mu\text{m}$ , 2 % $\text{H}_2\text{O}$ ) . . . . .	136
7.11	Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate von der Wasserkonzentration in der Gasphase ( $p = 1.01$ bar, $d_{part} = 100$ $\mu\text{m}$ , $T_g = 1200$ K)	138

7.12 Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrates von der Konzentration des Sauerstoffs in der Gasphase ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $d_{part} = 100 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1600 \text{ K}$ ,  $1\% \text{ H}_2\text{O}$ ) . . . . . 138

A.1 Zeitliche Evolution des Durchmessers eines Ethanol/Wassertropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen von Ethanol und Wasser ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ) . . . . . 145

A.2 Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von Ethanol/Wassertropfen ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ) . . . . . 146

A.3 Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Ethanol/Wassertropfens vom Mischungsverhältnis ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ) . . . . . 146

A.4 Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines Ethanol/Wassertropfens ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ ) . . . . . 147

A.5 Zeitliche Evolution der Massenbrüche  $w$  sowie der Anteile  $\epsilon$  der einzelnen Spezies am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines Ethanol/Wassertropfens (70% vol. Ethanol,  $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ ) . 147



# Tabellenverzeichnis

4.1	Vergleich der Brennkosten $K$ des Verbrennungsprozesses eines Methanoltröpfens . . . . .	43
4.2	Vergleich der Brennkosten $K$ des Verbrennungsprozesses eines Heptantröpfens . . . . .	46
5.1	Vergleich der physikalischen Stoffeigenschaften von n-Heptan und iso-Oktan (nach [101]) . . . . .	96
6.1	Die Fitparameter $a, b$ für die drei untersuchten Gastemperaturen . . . . .	109
6.2	Fortpflanzungsgeschwindigkeiten der Reaktionszone nach der Zündung ( $p = 7$ bar) . . . . .	120

## **Anmerkungen zur verwendeten Nomenklatur**

Im Gegensatz zu der in Deutschland üblichen Verwendung eines Kommas als Dezimaltrennzeichen wird im englischen Sprachraum ein Dezimalpunkt als Trennzeichen benutzt. Aufgrund des internationalen Austausches und Vergleichs der Resultate dieser Arbeit sowie der Benutzung von Software aus dem englischen Sprachraum können daher Inkonsistenzen auftreten. Um Verwechslungen vorzubeugen, werden in dieser Arbeit, mit Ausnahme von Originalabbildungen aus deutschen Quellen (Abbildung 1.1), konsequent Punkte und nicht Kommata als Dezimaltrennzeichen verwendet.

# Abstract

Detailed investigations and analyses of combustion processes improve the understanding of the underlying physical and chemical processes. This understanding is necessary for a reliable description and modeling of technical combustion processes which helps to optimize the efficiency of technical combustion systems and to reduce the amount of exhausted pollutants. Especially, the combustion of liquid and solid fuels is of major interest in this context. Current concepts of spray combustion, like Lean Premixed Prevaporized (LPP) and Lean Direct Injection (LDI) combustion in gas turbines as well as Direct Injection (DI) of liquid fuels in internal combustion engines, are promising technologies to lead to a more efficient and “cleaner“ combustion of fuels. In addition, the understanding of pulverized coal combustion is of major importance because of the wide spread of the usage of this technology.

Ignition and combustion processes in multiphase systems are simulated. Especially, the autoignition and combustion process of single fuel droplets surrounded by a gas atmosphere under isobaric conditions is investigated. The burning of fuel droplets is governed by the strong coupling of the chemical kinetics and the physical transport processes. Therefore, using detailed transport models as well as detailed chemical kinetics, the governing equations of the two phases are solved in a fully coupled way.

The existing simulation tool INSFLA has been improved to allow the simulation of the combustion of a single fuel droplet in a quiescent gas atmosphere under the assumption of spherical symmetry of the system. Additionally, the simulation tool FLAME2D has been developed, based on the parent tool DROP2D, to simulate the autoignition of single droplets in a laminar convective environment. The studied system is analogous to a moving droplet in a gas atmosphere.

The influence of different ambient parameters, such as gas temperature, droplet radius, droplet temperature, pressure, mixture composition, and relative velocity of the droplet, on the ignition delay time and the local conditions of ignition is investigated for different fuels, such as methanol, ethanol, n-heptane and iso-octane as well as for mixtures consisting of these fuels. The gas temperature turns out to be the dominating parameter of the ignition process. However, the dependence of the ignition delay time on the ambient gas temperature is diminished compared to the ignition of an homogeneous mixture of fuel and air. This diminished dependence is originated by the influence of the physical transport processes

which offer no exponential temperature dependence in contrast to the chemical kinetics. The influence of the droplet radius on the ignition delay depends strongly on the regime of the ambient gas temperature. For gas temperatures above 1000 K the physical transport processes are rate-limiting for the ignition process. Hence, a significant dependence of the ignition delay time on the droplet radius is obtained. Below 1000 K the major influence of the chemical kinetics leads to a minor dependence of the ignition delay time on the droplet radius. If the initial droplet temperature is sufficiently high only a minor dependence of the ignition delay time on the droplet temperature can be observed. For initial droplet temperatures far below the wet bulb temperature of the droplet the ignition delay time is extended by the heat-up period of the droplet. The different relevance of the chemical kinetics and the physical transport processes as rate-limiting process also arises in the investigation of the influence of the ambient pressure and of a prevaporization of fuel on the ignition process. Whereas in the high temperature regime the physical transport processes like diffusion and heat conduction are rate-limiting, the chemical kinetics plays a major role with respect to the ignition delay for lower ambient temperatures.

The complex ignition behavior of single n-heptane droplets is also studied. Due to gas temperature and ambient pressure different autoignition modes, namely single-stage ignition, two-stage ignition and cool flame behavior, are identified. The occurrence of a specific ignition mode can be attributed to the interplay of physical transport processes and chemical kinetics. These phenomena influence the local conditions of ignition, too. Whereas the single-stage ignition, the cool flame and the first stage of a two-stage ignition are initiated at locally lean conditions, like it is the case for the single-stage ignition of other fuels, the second stage of a two-stage ignition occurs under rich conditions which indicates that the process is dominated by the chemical kinetics.

Because technical fuels consist of a variety of chemical species the influence of the mixture composition on the ignition process is studied in the case of n-heptane/iso-octane droplets. Below an ambient temperature of 1000 K the ignition delay time is found to increase with an increasing volume fraction of iso-octane. Above 1000 K the ignition delay time appears to be almost independent of the mixture composition of the droplet due to the similar physical and chemical properties of n-heptane and iso-octane in this temperature range.

Because of the relative motion of fuel droplets and their exposure to a convective environment in technical applications of spray combustion the influence of a convective gas flow on the ignition process is investigated. The ignition delay time of single droplets is found to decrease significantly with increasing velocity of the convective gas flow. This decrease is attributed to the steepening of the spatial gradients of the profiles of physical variables, such as species mass fractions and temperature. This steepening leads to a speed-up of the physical transport processes. Furthermore, a downstream movement of the local ignition point with increasing flow velocity is observed. For higher flow velocities an ignition in the wake of the droplet followed by an upstream flame propagation is found.

The investigation of the subsequent combustion of the droplet exhibits a laminar non-premixed flame both in the case of a convective and a quiescent gas atmosphere. Thus, an explicit dependence of the local physical variables like temperature on the mixture fraction can be identified. At a particular set of ambient parameters, such as gas temperature, pressure and relative velocity of the droplet this function can be determined numerically with the help of the developed simulation tools.

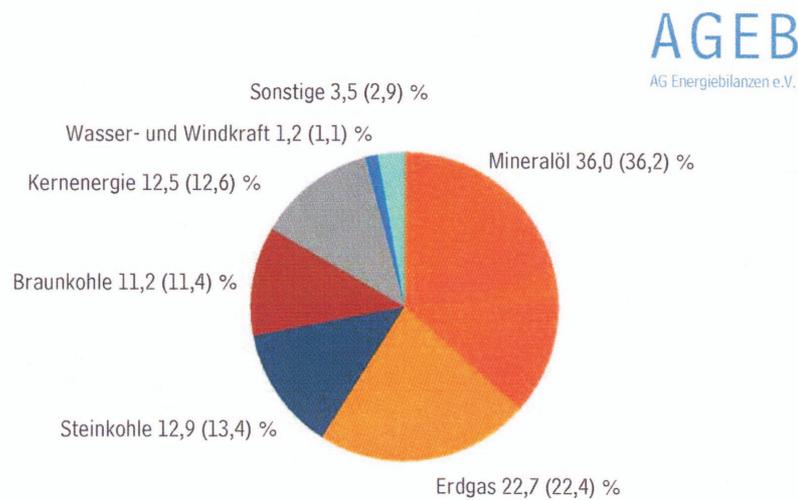
The burning process of a single carbon particle in air at isobaric conditions is also investigated. It turns out, that at the studied conditions both the burning rate and the surface temperature are only functions of the instantaneous particle radius and hence, independent of the prehistory of the particle. The burning process bears a strong resemblance to the transport controlled regime of droplet combustion. This finding is confirmed by the obtained results of a minor dependence of the burning rate on the ambient pressure and an almost linear dependence of the burning rate on the oxygen concentration of the ambient gas phase.



# Kapitel 1

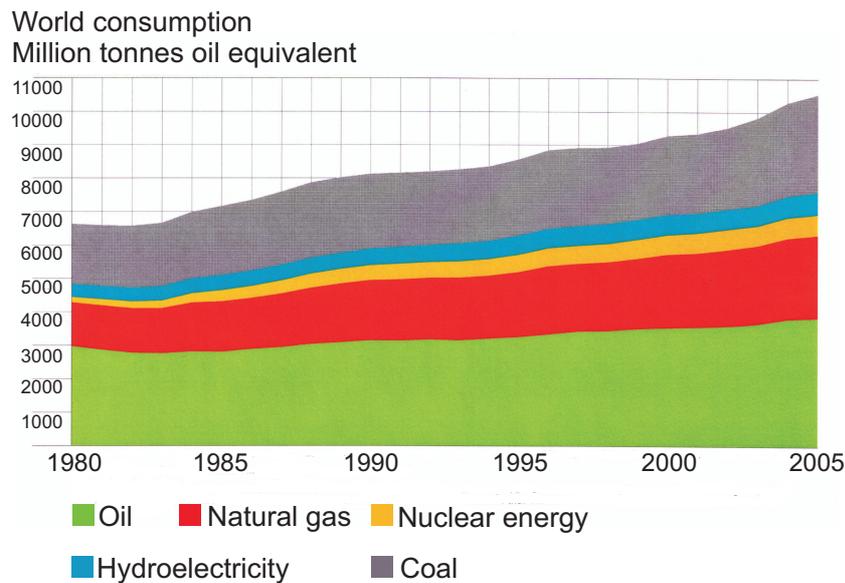
## Einleitung

Der größte Teil des Primärenergiebedarfs wird immer noch durch die Verbrennung fossiler Brennstoffe bereitgestellt. Wie Abbildung 1.1 und 1.2 zeigen, trifft dieser Umstand sowohl auf Deutschland als auch weltweit zu.



**Abbildung 1.1:** Primärenergieverbrauch von Deutschland [8]

Wurden in früheren Zeiten hauptsächlich Holz und Kohle verfeuert, wird heute die Energie vornehmlich durch die Verbrennung von aufbereitetem Erdöl und Erdgas bereitgestellt. Diese Energiewandlung findet dabei sowohl auf großindustrieller Seite in Heizkraftwerken zur Erzeugung elektrischer Energie als auch im privaten Bereich in Form von Verbrennungsmotoren im Auto oder von Heizungsanlagen statt. Die Verbrennung fossiler Energieträger ist aber auch mit der Entstehung von Verbrennungsprodukten, wie Kohlendioxid, sowie Schadstoffen, wie Kohlenmonoxid und Stickoxiden, verbunden. Die daraus resultierende Umweltbelastung soll in vielen Ländern durch die Vorgabe von gesetzlichen Grenzwerten eingeschränkt werden. Dieser Umstand der Umweltbelastung sowie der gesetzlichen



**Abbildung 1.2:** Primärenergieverbrauch weltweit [14]

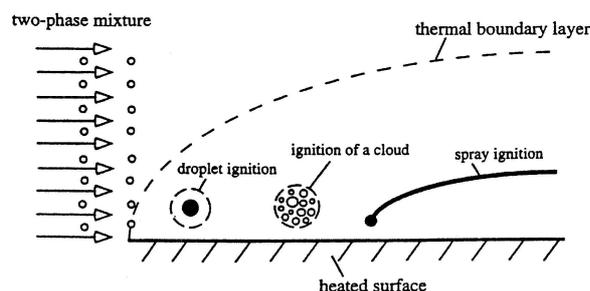
Rahmenbedingungen erfordert die Optimierung von Verbrennungsprozessen hinsichtlich der Minimierung von Schadstoffemissionen. Zudem resultiert aus der Endlichkeit der Energieressourcen, dem steigenden weltweiten Energiebedarf und den daraus folgenden steigenden Rohstoffpreisen die Notwendigkeit der Optimierung von Verbrennungsprozessen hinsichtlich der Effizienz bzw. des Wirkungsgrads technischer Verbrennungssysteme.

## 1.1 Motivation

Detaillierte Untersuchungen und Analysen von Verbrennungsprozessen fördern das grundlegende Verständnis der ablaufenden physikalischen und chemischen Vorgänge. Diese umfassen sowohl die Analyse von Resultaten als auch die Untersuchung der Einflüsse von Umgebungsbedingungen bzw. äußerer Parameter auf den zu untersuchenden Prozess.

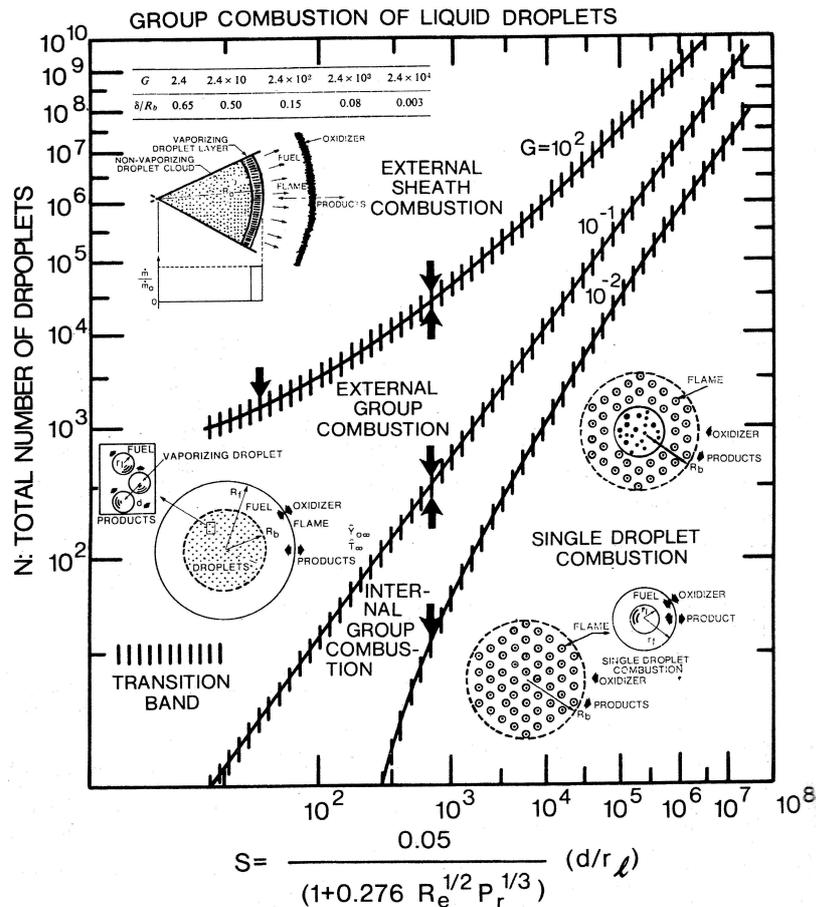
Die numerische Simulation stellt dabei eine wertvolle Ergänzung zu experimentellen Untersuchungen dar, da zum einen ein tieferer Einblick in den Charakter physikalischer und chemischer Prozesse und deren Kopplung möglich ist, der unter Umständen der experimentellen Untersuchung aufgrund messtechnischer Schwierigkeiten verwehrt bleibt. Die Simulation ermöglicht somit eine detaillierte Untersuchung der Interaktion zwischen chemischer Kinetik und physikalischen Transportprozessen. Diese Untersuchungen sind unerlässlich für das theoretische Verständnis von Verbrennungsprozessen, das Voraussetzung ist für die Neu- und Weiterentwicklung von Modellen. Zum anderen lassen sich im Rahmen von Simulationen äußere Einflussfaktoren ohne übermäßigen Mehraufwand gezielt und separat variieren. Zudem kann der Einfluss verschiedener Stoffeigenschaften durch Sensitivitätsanalysen oder Variation dieser bestimmt werden. Neben den genannten bietet die numerische Simulation

noch weitere Vorteile [66]. Dennoch ist die numerische Simulation keineswegs als Ersatz von experimentellen Untersuchungen anzusehen, sondern stellt vielmehr eine sinnvolle Ergänzung dieser dar. So erfolgt die Verifizierung mathematischer Modelle und numerischer Simulationen immer durch den Vergleich der Resultate mit experimentellen Ergebnissen. Aufgrund der zunehmenden Bedeutung von heterogenen Verbrennungssystemen werden in dieser Arbeit die Zündung und Verbrennung in Mehrphasensystemen, die aus flüssiger bzw. fester und gasförmiger Phase bestehen, untersucht. Für stationäre Gasturbinen sowie Flugzeugturbinen stellt die magere, vorgemischte Verbrennung (LPP: Lean Premixed Pre-vaporized) eine viel versprechende Technologie zur Effizienzsteigerung dar [10]. Dabei wird der flüssige Brennstoff in Form eines Sprays in die der Brennkammer vorgelagerten Vormischzone eingedüst. In dieser Vormischzone soll eine - zumindest teilweise - Verdampfung und Vermischung des Brennstoffs mit der Umgebungsluft stattfinden. Die Verbrennung in der Brennkammer hat aufgrund des vorliegenden weitgehend homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches eine Steigerung der Effizienz und eine Reduktion der Schadstoffe zur Folge. Bei der Durchführung dieses Verbrennungskonzepts muss jedoch gewährleistet werden, dass es in der Vormischzone zu keiner ungewollten Selbstzündung des Kraftstoffs kommt, da dies zu einer Zerstörung der Anlage führen würde. Ein weiteres Magerkonzept zur Reduktion von Schadstoffen besteht in der Direkteinspritzung von flüssigem Kraftstoff in die Brennkammer (LDI: Lean Direct Injection) [10]. Im Bereich der Verbrennungsmotoren stellen die Konzepte der Direkteinspritzung des flüssigen Kraftstoffs in den Brennraum sowohl in Dieselmotoren als auch in Ottomotoren die Möglichkeit der Steigerung der Effizienz der Verbrennung bei einer gleichzeitigen Reduktion der Schadstoffemissionen dar [116, 135, 146]. Auch hier muss im Fall des durch eine Zündkerze fremdgezündeten Ottomotors eine Selbstzündung des Kraftstoffs im Brennraum vermieden werden, da diese ungewollten Selbstzündungen (Klopfen) eine Zerstörung des Motors zur Folge haben.



**Abbildung 1.3:** Illustration der verschiedenen Zündmodi von Kraftstoffsprays [4]

Sowohl für die Zündung als auch die Verbrennung von Kraftstoffsprays lassen sich verschiedene Modi feststellen, wie die Abbildungen 1.3 und 1.4 zeigen. Es werden üblicherweise drei Zünd- bzw. Verbrennungsmodi voneinander unterschieden. Abhängig von den Umgebungsbedingungen, wie Temperatur und Druck, der Relativgeschwindigkeit der Tropfen und



**Abbildung 1.4:** Illustration der verschiedenen Verbrennungsmodi von Kraftstoffsprays in Abhängigkeit des Abstands und der Anzahl der Tropfen [20]

der umgebenden Gasphase sowie der Dichte des Kraftstoffsprays treten die Zündung bzw. Verbrennung von Einzeltropfen (droplet ignition, single droplet combustion), die Gruppenzündung bzw. -verbrennung (ignition of a cloud, group combustion) sowie die Sprayzündung und -verbrennung (spray ignition, external sheath combustion) auf. Aufgrund dieser unterschiedlichen Zünd- und Verbrennungsmodi erfordert die Optimierung der erwähnten Verbrennungsprozesse von Kraftstoffsprays eine genaue Kenntnis der in Gas- und Flüssigphase ablaufenden Vorgänge sowie deren Wechselwirkungen. Für eine zuverlässige Beschreibung und Modellierung der Verbrennung von Sprays ist jedoch ein grundlegendes Verständnis der zugrunde liegenden physikalischen und chemischen Prozesse unerlässlich. Die Verbesserung eines grundlegendes Verständnisses physikalischer und chemischer Phänomene wird am besten durch die Untersuchung wohldefinierter Systeme erreicht. Ein einzelner Tropfen repräsentiert dabei das einfachste System, in dem sowohl Flüssig- als auch Gasphase vorhanden ist. Zudem stellt ein Einzeltropfen den Grundbestandteil eines Kraftstoffsprays dar.

Gleiches gilt für die Untersuchung von heterogenen Systemen bestehend aus fester und

gasförmiger Phase, wie sie z. B. bei der Verbrennung von Kohle oder Graphit auftreten. Das einfachste Modellsystem, an dem grundlegende Studien durchgeführt werden können, ist hierbei durch ein kugelförmiges Partikel bestehend aus Kohlenstoff gegeben.

## 1.2 Phänomenologie

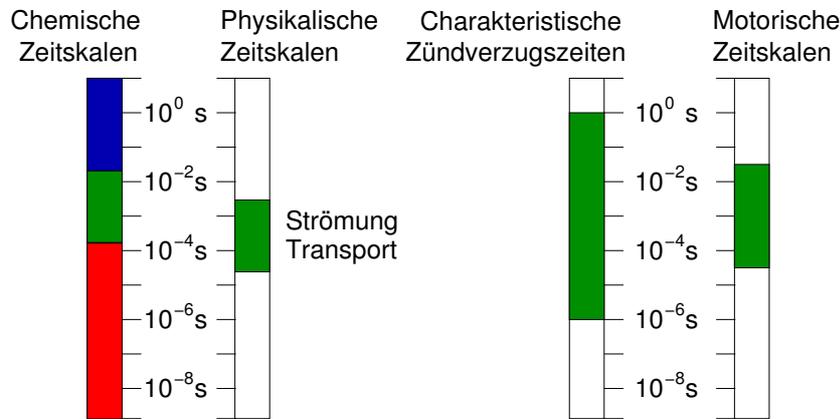
Die Betrachtung eines einzelnen Tropfens oder Partikels erlaubt die Reduktion der Anzahl der räumlichen Koordinaten. Unter der Annahme, dass weder eine äußere Strömung noch eine äußere Beschleunigung vorhanden ist, wird ein Einzeltropfen in einer ruhenden Gasatmosphäre betrachtet. Somit kann sphärische Symmetrie angenommen werden, und es muss nur die radiale Raumrichtung simuliert werden. Es handelt sich also um ein eindimensionales Modell bzw. eine eindimensionale Simulation. Soll zudem eine äußere Strömung oder Beschleunigung betrachtet werden, ist es notwendig, die Modellierung auf zwei Raumrichtungen zu erweitern, wobei weiterhin die Rotationssymmetrie um eine Achse angenommen wird. Aufgrund der Reduktion der zu simulierenden Raumrichtungen und des damit verbundenen Rechenaufwands ist es möglich, die physikalischen Transportprozesse und die chemischen Reaktionsprozesse detailliert zu modellieren. Dies umfasst eine erhebliche Anzahl zu berücksichtigender chemischer Spezies und Reaktionen. Diese Betrachtungsweise bietet jedoch die Möglichkeit, die grundlegenden, mikroskopischen physikalischen und chemischen Prozesse und deren Wechselwirkung zu untersuchen. Die Erkenntnisse, die aus diesen Untersuchungen gewonnen werden, können anschließend dazu benutzt werden, um die Effizienz und die Sicherheit bei der Verbrennung von flüssigen Kraftstoffen zu steigern sowie die Schadstoffemissionen zu reduzieren.

Die Zündung und Verbrennung eines einzelnen Kraftstofftropfens wird durch die grundlegenden physikalischen, thermodynamischen und chemischen Prozesse, wie Verdampfung<sup>1</sup>, Wärmeleitung, Diffusion und chemische Kinetik und deren Wechselwirkungen charakterisiert [77]. Besonders für die Modellierung von transienten Prozessen, wie z. B. Zündvorgängen, ist ein detailliertes Verständnis dieser Wechselwirkungen notwendig. Die starke Interdependenz der einzelnen Teilprozesse erfordert die detaillierte Modellierung dieser Teilprozesse [11]. Die starke Abhängigkeit wird durch die Tatsache dokumentiert, dass die charakteristischen Zeitskalen der einzelnen Prozesse sich überschneiden [77]. Des Weiteren decken sich diese Zeitskalen teilweise mit charakteristischen Zündverzugszeiten sowie typischen Zeitskalen technischer Systeme wie Verbrennungsmotoren. Abbildung 1.5 veranschaulicht diesen Umstand. So kann z. B. eine Variation des Tropfenradius oder der Gastemperatur

---

<sup>1</sup>Die Begriffe Verdampfung und Verdunstung werden in dieser Arbeit als Synonyme verwendet, da die Temperatur der verdampfenden Flüssigkeit hier in der Regel unterhalb der Siedetemperatur liegt. Da ein unter diesen Bedingungen ablaufender Verdampfungsprozess als Verdunstung bezeichnet wird [33], sind beide Bezeichnungen gerechtfertigt. Zudem besteht mikroskopisch kein Unterschied zwischen der Verdampfung einer Flüssigkeit unterhalb des Siedepunkts und am Siedepunkt.

dazu führen, dass ein Übergang der für den Zündvorgang geschwindigkeitsbestimmenden Teilprozesse von den physikalischen Transportprozessen zur chemischen Kinetik stattfindet.



**Abbildung 1.5:** Charakteristische Zeitskalen der physikalischen und chemischen Prozesse sowie typische Zündverzugszeiten und motorische Zeitskalen

Aufgrund dieser interessanten und relevanten Fragestellung ist das Phänomen der Verbrennung von Einzeltropfen bereits vielfach untersucht worden. Die Mehrheit der Studien sind dabei experimenteller Natur, wie z. B. [9, 21, 48, 49, 53, 63, 84, 137]. Mehrere experimentelle Untersuchungen befassen sich auch mit dem Zündvorgang von Einzeltropfen bzw. der Bestimmung von Zündverzugszeiten (z. B. [38, 83, 127–129]). Es wurden auch numerische Studien durchgeführt, die z. T. auf Vereinfachungen wie der Annahme einer Einschrittkinetik [133] beruhen. Einige Autoren verwendeten detaillierte numerische Modelle (z. B. [21, 23, 25, 106, 107, 118]). Die meisten der erschienenen Arbeiten befassen sich jedoch mit Tropfen bestehend aus einer chemischen Spezies. Die Zahl der Untersuchungen von Multikomponenten-Tropfen ist hingegen weitaus geringer. Nichtsdestotrotz sind einige experimentelle (z. B. [29, 73, 90, 110]) sowie numerische (z. B. [25, 54, 59, 71, 72]) Untersuchungen durchgeführt worden. Obwohl Kraftstofftropfen in Sprays einer Gasströmung ausgesetzt sind, behandeln nur wenige Untersuchungen den Einfluss einer konvektiven Gasströmung auf das Zündungs- und Verbrennungsverhalten von Tropfen (z. B. [7, 31, 93–96, 132, 139, 143]). Aufgrund ihrer Bedeutung ist die Thematik der Verbrennung von Tropfen bereits in einigen Übersichtsarbeiten von Law [60], Faeth [35, 36], Sirignano [113] und Dwyer [30] zusammengefasst worden.

### 1.3 Zielsetzung

Auch wenn der Zündungs- und Verbrennungsprozess von Einzeltropfen bereits in einer großen Zahl von Arbeiten untersucht worden ist, so besteht dennoch hinsichtlich einiger Aspekte Klärungsbedarf. Da die Interdependenz der physikalischen und chemischen Teilprozesse während des Zündprozesses am stärksten ist und da die Untersuchung des Zündpro-

zesses im Vergleich zum nachfolgenden Verbrennungsprozess experimentell größere Schwierigkeiten bereitet, liegt der Fokus dieser Arbeit auf der Untersuchung des Zündprozesses. Aus diesem Grund werden in dieser Arbeit die lokalen Bedingungen, die am Zündort in der Umgebung des Tropfens herrschen, untersucht. Des Weiteren wird das Zündungs- und Verbrennungsverhalten von Kraftstofftropfen bei verschiedenen Umgebungsbedingungen charakterisiert. Auch der Einfluss von verschiedenen Umgebungsparametern, wie z. B. Umgebungstemperatur, Umgebungsdruck oder Tropfentemperatur, wird qualitativ und quantitativ festgestellt. Die Größe, anhand der dieser Einfluss am besten ermittelt werden kann, ist die Zündverzugszeit. Hier soll auch insbesondere die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gemischzusammensetzung von Multikomponenten-Tropfen bestimmt werden. Zudem wird mittels zweidimensionaler Simulationen der Einfluss einer äußeren Strömung und Beschleunigung auf den Zündprozess und die Zündverzugszeit untersucht. Die erwähnten Studien werden an verschiedenen Brennstoffen durchgeführt, die wie n-Heptan und iso-Oktan, als Modellkraftstoffe für technische Brennstoffe gelten, oder die wie Methanol und Ethanol als alternative Brennstoffe von Bedeutung sind [40, 88, 99, 136]. Die Arbeit ermöglicht somit die Bestimmung der dominanten Teilprozesse des Zündprozesses für unterschiedliche Anfangs- und Umgebungsbedingungen. Es werden die geschwindigkeitsbestimmenden bzw. zeitlimitierenden Faktoren identifiziert. Des Weiteren können auch Aussagen über Zündmodi getroffen werden, die Tropfen bestehend aus bestimmten Brennstoffen, wie n-Heptan, aufweisen.

In zu den Tropfen analoger Weise werden die geschwindigkeitsbestimmenden Teilprozesse der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels in einer ruhenden Gasatmosphäre identifiziert, und der Einfluss von verschiedenen Umgebungsparametern auf charakteristische Größen des Partikelabbrands, wie Brennrate und Oberflächentemperatur, bestimmt.

Zur Realisierung der oben genannten Punkte ist deshalb im Rahmen dieser Arbeit das bestehende Programm INSFLA zur Simulation eindimensionaler instationärer Verbrennungsvorgänge in der Gasphase [66, 70] erweitert worden, so dass nun die instationäre Simulation eines Multikomponenten-Tropfens in einer ruhenden Gasatmosphäre möglich ist. Zudem ist das zweidimensionale Simulationstool FLAME2D entwickelt worden, das auf dem Vorgänger DROP2D [6] basiert. Dieses Programm erlaubt die Simulation zweidimensionaler instationärer Verbrennungsprozesse unter Beteiligung eines Brennstofftropfens. Die beiden entwickelten Simulationstools bieten außer der detaillierten Untersuchung des Verbrennungsprozesses auch die Möglichkeit der Erstellung von Flamelet-Bibliotheken, die in der Simulation von turbulenten Sprayflammen eingesetzt werden können [37, 52]. Aus diesem Grund werden in Abschnitt 4.10 und Abschnitt 6.5 mit INSFLA und FLAME2D erzeugte Flamelets von Einzeltropfen dargestellt und der Einfluss verschiedener Umgebungsparameter auf diese Flamelets aufgezeigt.

Im folgenden werden dazu zunächst die physikalischen und chemischen Grundlagen des Verbrennungsprozesses von Brennstofftropfen bzw. -partikeln sowie die numerischen Aspekte

der Modellierung und Simulation dieses Prozesses erläutert. Anschließend werden die Resultate der Simulationstools validiert und die Ergebnisse der Untersuchungen des Zünd- und Verbrennungsprozesses von Einzeltropfen dargestellt. Dabei wird zunächst auf die Zündung und Verbrennung von Einzeltropfen bestehend aus einer Brennstoffkomponente in einer ruhenden Gasatmosphäre eingegangen. Anschließend wird die Zündung und Verbrennung von Mehrkomponenten-Tropfen untersucht. Danach wird der Einfluss einer äußeren Gasströmung bzw. einer Relativbewegung von Tropfen und Gasphase auf den Zünd- und Verbrennungsprozess analysiert. Abschließend werden die Resultate der Simulation der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels präsentiert.

# Kapitel 2

## Physikalische und chemische Grundlagen

### 2.1 Die Erhaltungsgleichungen

Die Dynamik eines chemisch reagierenden Systems wird mathematisch durch die ihm zugrunde liegenden Erhaltungsgleichungen bestimmt [66]. Die Erhaltungsgleichungen beschreiben die zeitliche Änderung der Dichteverteilung  $f(\vec{r}, t)$  einer extensiven physikalischen Größe in einem Volumenelement. Diese Änderung kann durch einen Fluss  $\vec{\Phi}$  durch die Oberfläche des Volumenelements, z. B. Diffusion oder Wärmeleitung, durch die Produktion oder Vernichtung  $\dot{q}$  im Inneren des Volumenelements, z. B. chemische Reaktionen, oder durch eine Fernwirkung  $s$ , z. B. Wärmestrahlung, verursacht werden.

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \operatorname{div} \vec{\Phi}_f = \dot{q}_f + s_f \quad (2.1)$$

Bei der Betrachtung von Mehrphasensystemen, wie einem Flüssigkeitstropfen oder einem Kohlepartikel in einer Gasatmosphäre, ist es notwendig, zusätzlich zu den Bilanzgleichungen eines Volumenelements, auch die Bilanzgleichungen eines Oberflächenelements darzustellen, um eine Modellierung des Phasenübergangs zu ermöglichen. Analog zu den Erhaltungsgleichungen in einem Volumenelement lassen sich Bilanzgleichungen an Grenzflächen, z. B. Phasengrenzen, herleiten. Diese Bilanzgleichungen charakterisieren die zeitliche Änderung der Flächendichte  $f_a$  einer physikalischen Größe auf der Grenzfläche. Für die zeitliche Veränderung können wiederum Flüsse durch die Oberfläche  $\vec{\Phi}$ , Produktion auf der Grenzfläche  $\dot{q}_a$  oder eine Fernwirkung  $s_a$  verantwortlich sein.

$$\frac{\partial f_a}{\partial t} + \vec{n} \cdot (\vec{\Phi}_f^+ - \vec{\Phi}_f^-) = \dot{q}_{fa} + s_{fa} \quad (2.2)$$

Die Lage der Grenzfläche im Raum wird durch den Normalenvektor  $\vec{n}$  charakterisiert. Die Indizes + und – bezeichnen die zum jeweiligen Fluss gehörende Phase.

### 2.1.1 Erhaltungsgleichungen in den homogenen Phasen

Mit der oben erwähnten Bilanzgleichung (2.1) lässt sich die Erhaltung der physikalischen Größen Gesamtmasse, Speziesmassen, Impuls und Energie mathematisch formulieren. Auf eine detaillierte Herleitung der einzelnen Terme wird verzichtet. Diese finden sich z. B. in [12], [66] oder in [138]. Die Massenerhaltungsgleichung, oder auch Kontinuitätsgleichung, ist gegeben durch

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \vec{v}) = 0 \quad , \quad (2.3)$$

wobei  $\frac{\partial \rho}{\partial t}$  die zeitliche Änderung der Dichte und  $\vec{v}$  die Geschwindigkeit bezeichnet.  $\operatorname{div}(\rho \vec{v})$  ist somit der konvektive Beitrag zur Bilanz.

Die Erhaltungsgleichung der Speziesmassen

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho_i \vec{v}) + \operatorname{div} \vec{j}_i = M_i \dot{\omega}_i \quad (2.4)$$

besteht in analoger Weise aus der zeitlichen Änderung der Speziesdichte  $\rho_i$  und einem konvektiven Anteil. Hinzu kommt der diffusive Anteil  $\operatorname{div} \vec{j}_i$  und der Produktionsterm  $M_i \dot{\omega}_i$  aufgrund von chemischen Reaktionen, der durch die molare Masse  $M_i$  und die Bildungsgeschwindigkeit  $\dot{\omega}_i$  der Spezies  $i$  bestimmt wird. Mit  $\vec{j}_i$  wird die Diffusionsstromdichte der Spezies  $i$  bezeichnet.

In der Impulserhaltungsgleichung

$$\frac{\partial(\rho \vec{v})}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \vec{v} \otimes \vec{v}) + \operatorname{div} \bar{\bar{p}} = \rho \vec{a} \quad (2.5)$$

tritt erneut ein konvektiver Anteil auf. Mit  $\otimes$  wird das dyadische Produkt zweier Vektoren bezeichnet. Hinzu kommt der durch Druck- und Reibungskräfte bedingte Anteil  $\operatorname{div} \bar{\bar{p}}$ .  $\bar{\bar{p}}$  stellt den Drucktensor dar. Im Gegensatz zu den bisherigen Erhaltungsgleichungen existiert die Fernwirkung  $\rho \vec{a}$ , die durch Gravitation oder eine andere äußere Beschleunigung  $\vec{a}$  verursacht wird.

Die Änderung der Gesamtenergie

$$\frac{\partial(\rho e)}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho e \vec{v} + \vec{j}_q + \bar{\bar{p}} \vec{v}) = 0 \quad (2.6)$$

setzt sich aus einem konvektiven Anteil, der Wärmeleitung  $\operatorname{div}(\vec{j}_q)$  und dem Anteil  $\operatorname{div}(\bar{\bar{p}} \vec{v})$ , der durch die Arbeit der Druckkräfte verursacht wird, zusammen. Der Energieaustausch mit der Umgebung durch Strahlung kann bei den hier behandelten Problemen vernachlässigt werden. Unter Verwendung des Zusammenhangs zwischen innerer Energie  $u$  und Gesamtenergie  $e$

$$\rho u = \rho e - \frac{1}{2} \rho |\vec{v}|^2 \quad (2.7)$$

erhält man als Bilanzgleichung für die innere Energie

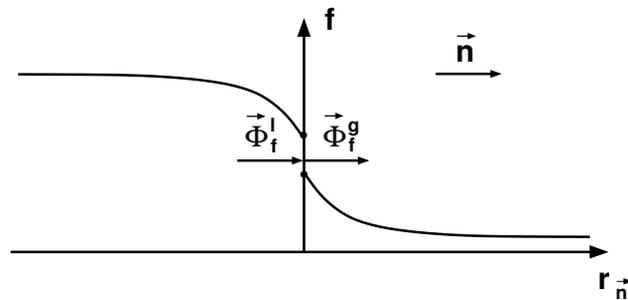
$$\frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho u \vec{v} + \vec{j}_q) + \bar{p} : \operatorname{grad} \vec{v} = 0 \quad . \quad (2.8)$$

### 2.1.2 Erhaltungsgleichungen an der Phasengrenzfläche

Ebenso wie für die homogenen Phasen lassen sich am Phasenübergang ausgehend von der Bilanzgleichung (2.2) die Erhaltungsgleichungen für die physikalischen Größen Gesamtmasse, Speziesmassen, Impuls und Energie ermitteln. Unter der Annahme eines lokalen Phasengleichgewichts an der Phasengrenzfläche ( $\frac{\partial f_a}{\partial t} = 0$ ) [72, 122] ergibt sich aus Gleichung (2.2)

$$\vec{n} \cdot (\vec{\Phi}_f^+ - \vec{\Phi}_f^-) = \dot{q}_{fa} + s_{fa} \quad . \quad (2.9)$$

Die folgende Modellierung des Phasenübergangs wird für ein Mehrphasensystem bestehend aus einer flüssigen und einer gasförmigen Phase durchgeführt. Da das Modell auch Oberflächenreaktionen beinhaltet, kann eine Verallgemeinerung des Modells auf ein Mehrphasensystem bestehend aus fester und gasförmiger Phase in intuitiver Weise vorgenommen werden. Im folgenden werden die oberen Indizes + und – durch die Indizes  $l$  und  $g$  ersetzt, die die flüssige bzw. die gasförmige Phase repräsentieren. Abbildung 2.1 zeigt beispielhaft das Profil einer physikalischen Größe entlang des Normalenvektors der Phasengrenzfläche.



**Abbildung 2.1:** Illustration des lokalen Phasengleichgewichts an der Phasengrenzfläche

Nichtsdestotrotz hat das beschriebene Modell auch für ein Mehrphasensystem bestehend aus fester und gasförmiger Phase, wie es in Kapitel 7 behandelt wird, Gültigkeit. Der Index  $l$  repräsentiert in diesem Fall die feste Phase. Es werden zudem der flüssige und der gasförmige Zustand der Spezies  $i$  als zwei verschiedene Spezies behandelt. Daraus folgen die Bilanzgleichungen für die flüssige Phase

$$\vec{n} \cdot (-\vec{\Phi}_f^l) = \dot{q}_{fa}^l + s_{fa}^l \quad (2.10)$$

und für die Gasphase

$$\vec{n} \cdot \vec{\Phi}_f^g = \dot{q}_{fa}^g + s_{fa}^g \quad . \quad (2.11)$$

Die Stromdichten setzen sich aus einem konvektiven und einem diffusiven Anteil zusammen.

$$\vec{\Phi}_f^g = \rho_i^g \vec{v}^g + \vec{j}_i^g \quad (2.12)$$

$$\vec{\Phi}_f^l = \rho_i^l \vec{v}^l + \vec{j}_i^l \quad (2.13)$$

Für die Produktionsterme erhält man

$$\dot{q}_i^g = \epsilon_i^g \phi_{vap} + R_i^G \quad (2.14)$$

$$\dot{q}_i^l = -\epsilon_i^l \phi_{vap} + R_i^L \quad , \quad (2.15)$$

wobei mit  $\phi_{vap}$  der Massenstrom der Verdunstung, i. e. die flächenbezogene Gesamtmasse, die von der flüssigen in die gasförmige Phase übergeht, bezeichnet wird.  $\epsilon_i$  gibt den Anteil der Spezies  $i$  an diesem Verdunstungsstrom an. Da die Verdunstungsströme der Flüssig- und Gasphase äquivalent sind, gilt

$$\epsilon_i^g = \epsilon_i^l = \phi_{vap,i} / \phi_{vap} \quad . \quad (2.16)$$

Zusätzlich zur Verdunstung bzw. Kondensation können auch Oberflächenreaktionen berücksichtigt werden. Diese werden durch Reaktionsraten  $R_i$  repräsentiert.

Setzt man die jeweiligen Ausdrücke (2.12), (2.13), (2.14) und (2.15) in die Bilanzgleichungen (2.11) und (2.10) ein, erhält man als Erhaltungsgleichungen an der Phasengrenze

$$\rho_i^g v^g + j_i^g = \epsilon_i^g \phi_{vap} + R_i^g \quad (2.17)$$

$$\rho_i^l v^l + j_i^l = \epsilon_i^l \phi_{vap} - R_i^l \quad , \quad (2.18)$$

wobei mit  $v^g$  bzw.  $v^l$  der Betrag des senkrechten Anteils der Geschwindigkeit an der Phasengrenze bezeichnet wird. Durch Summation über alle Spezies  $i$  ergeben sich die Erhaltungsgleichungen für die Impulse  $\rho^g v^g$  und  $\rho^l v^l$ .

$$\rho^g v^g = \phi_{vap} + \sum_i R_i^g = \phi_{vap} + \phi_{stef} \quad (2.19)$$

$$\rho^l v^l = \phi_{vap} - \sum_i R_i^l = \phi_{vap} + \phi_{stef} \quad (2.20)$$

$\phi_{stef} = \sum_i R_i^g$  beschreibt dabei den Stefan-Fluss aufgrund von Oberflächenreaktionen. Dieser gibt den Gesamtmassenstrom in die Gasphase, der durch die Summe der Oberflächenreaktionen entsteht, an. Aufgrund der Kontinuität gilt für den Stefan-Fluss

$$\phi_{stef} = \sum_i R_i^g = - \sum_i R_i^l \quad . \quad (2.21)$$

Setzt man (2.19) und (2.20) in die Erhaltungsgleichungen (2.17) und (2.18) ein, folgen daraus die Erhaltungsgleichungen für die Speziesmassen.

$$\phi_{vap} (w_i^g - \epsilon_i^g) + j_i^g + w_i^g \sum_j R_j^g - R_i^g = 0 \quad (2.22)$$

$$\phi_{vap} (w_i^l - \epsilon_i^l) + j_i^l - w_i^l \sum_j R_j^l + R_i^l = 0 \quad (2.23)$$

Mit  $w_i$  ist der Massenbruch der Spezies  $i$  bezeichnet.

Die Stromdichten der Energie sind gegeben durch

$$\vec{\Phi}_f^g = \rho^g h^g \vec{v}^g + \vec{j}_q^g \quad (2.24)$$

$$\vec{\Phi}_f^l = \rho^l h^l \vec{v}^l + \vec{j}_q^l \quad , \quad (2.25)$$

wobei mit  $h$  die spezifische Enthalpie der jeweiligen Phase bezeichnet ist. Zur Wärmestromdichte  $\vec{j}_q$  in Mischungen aus mehreren Spezies trägt auch ein Anteil  $\vec{j}_{q,d}$  bei, der durch die Diffusion von Teilchen verschiedener Enthalpie verursacht wird.

$$\vec{j}_q = \vec{j}_{q,c} + \vec{j}_{q,d} = \vec{j}_{q,c} + \sum_i h_i \vec{j}_i \quad (2.26)$$

Eine ausführliche Diskussion der zur Wärmestromdichte  $\vec{j}_q$  beitragenden Prozesse erfolgt in Abschnitt 2.2.2. Bei der Simulation der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels muss zudem der Energieverlust durch Wärmestrahlung an der Oberfläche berücksichtigt werden. Analog zum Stefan-Boltzmann Gesetz erhält man für die Strahlungsemission eines grauen Körpers [112] den Fernwirkungsterm

$$s^g = \epsilon(T) \sigma (T^4 - T_{ref}^4) \quad . \quad (2.27)$$

Mit  $\sigma$  ist die Stefan-Boltzmann Konstante und mit  $T_{ref}$  die Referenztemperatur bezeichnet.  $\epsilon(T)$  gibt die Temperaturabhängigkeit des Emissionsvermögens des jeweiligen Stoffs an. Die umgebende Gasphase wird hingegen als transparent angenommen, d. h. keine Absorption von Wärmestrahlung tritt in der Gasphase auf.

Für die Energieerhaltungsgleichungen an der Phasengrenze ergibt sich somit aus (2.9) unter Verwendung von (2.24), (2.25) und (2.27)

$$\rho^g h^g \vec{v}^g + \vec{j}_q^g - \rho^l h^l \vec{v}^l - \vec{j}_q^l = \epsilon(T) \sigma (T^4 - T_{ref}^4) \quad . \quad (2.28)$$

Mit (2.19) und (2.20) erhält man

$$(\phi_{vap} + \phi_{stef})(h^g - h^l) + \vec{j}_q^g - \vec{j}_q^l = \epsilon(T)\sigma(T^4 - T_{ref}^4) \quad . \quad (2.29)$$

Daraus ergibt sich unter Verwendung von  $h = \sum w_i h_i$  und (2.26)

$$(\phi_{vap} + \phi_{stef})\left(\sum_i w_i^g h_i^g - \sum_i w_i^l h_i^l\right) + \vec{j}_{q,c}^g + \sum_i h_i^g \vec{j}_i^g - \vec{j}_{q,c}^l - \sum_i h_i^l \vec{j}_i^l = \epsilon(T)\sigma(T^4 - T_{ref}^4) \quad . \quad (2.30)$$

Unter Berücksichtigung der Spezieserhaltungsgleichungen (2.22) und (2.23) folgt daraus für die Energieerhaltungsgleichung an der Phasengrenze

$$\sum_i \epsilon_i \phi_{vap} \Delta h_{vap,i} + \sum_i R_i^g h_i^g - \sum_i R_i^l h_i^l + \vec{j}_{q,c}^g - \vec{j}_{q,c}^l = \epsilon(T)\sigma(T^4 - T_{ref}^4) \quad . \quad (2.31)$$

$\Delta h_{vap,i}$  ist dabei die Verdampfungsenthalpie der Spezies  $i$ . Dabei ist zu beachten, dass (2.29) und (2.31) zwei äquivalente Formulierungen für die Energieerhaltung an der Phasengrenze darstellen. Zudem wird für die Temperaturen der flüssigen und gasförmigen Phase an der Phasengrenze die Stetigkeitsbedingung

$$T^l = T^g \quad (2.32)$$

angenommen.

Zur Schließung des Gleichungssystems an der Phasengrenze werden noch der Massenstrom der Verdunstung und die jeweiligen Anteile  $\epsilon_i$  der Spezies  $i$  an diesem benötigt.

Nach dem Daltonschen Gesetz für ideale Mischungen [126] ist der Dampfdruck einer mehrkomponentigen Flüssigkeit gegeben durch

$$p_{vap} = \sum_i x_i^l p_{vap,i} = \sum_i p_{vap,i}^* \quad . \quad (2.33)$$

$x_i^l$  bezeichnet dabei den Molenbruch der Spezies  $i$  in der flüssigen Phase an der Phasengrenze,  $p_{vap,i}$  gibt den Dampfdruck der Spezies  $i$  an, für den gilt

$$p_{vap,i} = p_{vap,i}(T^l) \quad . \quad (2.34)$$

Für die Anteile  $\epsilon_i$  der Spezies  $i$  ergibt sich mit der Definition von  $p_{vap,i}^*$  aus (2.33)

$$\epsilon_i = \frac{\phi_{vap,i}}{\phi_{vap}} = \frac{M_i \phi_{vap,i,mol}}{\bar{M} \phi_{vap,mol}} = \frac{M_i p_{vap,i}^*}{\bar{M} \sum p_{vap,i}^*} \quad . \quad (2.35)$$

Die  $\phi_{vap,mol}$  bezeichnen dabei die molaren Verdunstungsströme,  $M_i$  ist die molare Masse der Spezies  $i$ , und  $\bar{M}$  ist die mittlere molare Masse des Verdunstungsstroms.

Für den Molenbruch der Spezies  $i$  im gesättigten Dampf gilt

$$x_i^g = \frac{p_{vap,i}^*}{p_{amb}} \quad (2.36)$$

$p_{amb}$  repräsentiert dabei den Gesamtdruck der Gasphase. Somit ist der Massenbruch der Spezies  $i$  im gesättigten Dampf gegeben durch

$$w_i^g = \frac{M_i}{M} x_i^g = \frac{p_{vap,i}^*}{p_{amb}} \frac{M_i}{M} \quad (2.37)$$

Durch Aufsummieren von (2.22) über die verdunstenden Spezies  $j_{vap}$  folgt für den Verdunstungsstrom unter der Annahme, dass  $w_i^g$  durch den Massenbruch der Spezies  $i$  im gesättigten Dampf ausgedrückt werden kann,

$$\phi_{vap} = \frac{-\sum_{j_{vap}} j_j^g - \sum_{j_{vap}} w_j^g \phi_{stef} + \sum_{j_{vap}} R_j^g}{\sum_{j_{vap}} \frac{p_{vap,j}^* M_j}{p_{amb} M} - 1} \quad (2.38)$$

Aufgrund der Kenntnis des Verdunstungsstroms sowie des Stefan-Flusses kann zudem die zeitliche Änderung des Tropfenradius  $r_D$  bestimmt werden.

$$\frac{dr_D}{dt} = -\frac{\phi_{vap} + \phi_{stef}}{\bar{\rho}^l} - \frac{r_D}{2\bar{\rho}^l} \frac{d\bar{\rho}^l}{dt} \quad (2.39)$$

$\bar{\rho}^l$  bezeichnet dabei die mittlere Dichte des Tropfens. Neben der zeitlichen Änderung des Tropfenradius durch Verdunstung und Oberflächenreaktionen ist in (2.39) ebenfalls die Änderung des Radius aufgrund der zeitlichen Dichtevariation des Tropfens berücksichtigt.

## 2.2 Transportvorgänge

Um die Erhaltungsgleichungen aus Kapitel 2.1 zu schließen, müssen die noch unbekannt GröÙen  $\bar{p}$ ,  $\vec{j}_q$ ,  $\vec{j}_i$  und  $\omega_i$  als Funktionen der abhängigen Variablen ausgedrückt werden. Diese Funktionen basieren auf empirischen Beobachtungen und werden als „phänomenologische Gleichungen“ bezeichnet. Im einzelnen handelt es sich dabei um das Newtonsche Schubspannungsgesetz zur Berechnung des viskosen Drucktensors, das Fouriersche Wärmeleitungsgesetz zur Berechnung der Wärmestromdichte, das Ficksche Gesetz zur Berechnung der Diffusionsstromdichten, das ideale Gasgesetz zur Berechnung des Drucks und ein modifiziertes Arrheniusgesetz zur Berechnung der chemischen Produktionsterme.

### 2.2.1 Das Newtonsche Schubspannungsgesetz

Der Drucktensor  $\bar{p}$  setzt sich aus einem Anteil des hydrostatischen Drucks  $p$  und einem Anteil des viskosen Drucktensors  $\bar{\Pi}$  zusammen [12].

$$\bar{p} = p\bar{E} + \bar{\Pi} \quad (2.40)$$

Mit  $\bar{\bar{E}}$  ist dabei der Einheitstensor bezeichnet. Zur Schließung der Erhaltungsgleichungen muss der viskose Drucktensor als Funktion der abhängigen Variablen ausgedrückt werden. Dabei gilt für Newtonsche Flüssigkeiten [12]

$$\bar{\bar{\Pi}} = -\mu [(\text{grad } \vec{v}) + (\text{grad } \vec{v})^T] + \left(\frac{2}{3}\mu - \kappa\right) (\text{div } \vec{v})\bar{\bar{E}} \quad . \quad (2.41)$$

Im allgemeinen kann der Beitrag der Volumenviskosität  $\kappa$  jedoch vernachlässigt werden, und es ergibt sich für den viskosen Drucktensor [12]

$$\bar{\bar{\Pi}} = -\mu [(\text{grad } \vec{v}) + (\text{grad } \vec{v})^T] + \frac{2}{3}\mu(\text{div } \vec{v})\bar{\bar{E}} \quad . \quad (2.42)$$

### 2.2.2 Das Fouriersche Wärmeleitungsgesetz

Die Wärmestromdichte  $\vec{j}_q$  setzt sich, wie bereits in Kapitel 2.1.2 erwähnt, aus mehreren Anteilen zusammen.

$$\vec{j}_q = \vec{j}_{q,c} + \vec{j}_{q,d} = \vec{j}_{q,F} + \vec{j}_{q,D} + \vec{j}_{q,d} \quad (2.43)$$

Der durch Wärmeleitung verursachte Anteil der Wärmestromdichte ist nach dem Fourierschen Gesetz gegeben durch

$$\vec{j}_{q,F} = -\lambda \text{grad } T \quad . \quad (2.44)$$

Er ist proportional zum negativen Gradienten der Temperatur. Hinzu kommt die Wärmestromdichte, die durch die Diffusion von Teilchen verschiedener spezifischer Enthalpie verursacht wird.

$$\vec{j}_{q,d} = \sum_i h_i \vec{j}_i \quad (2.45)$$

Da die aufgrund des Dufour-Effekts auftretende Wärmestromdichte  $\vec{j}_{q,D}$  sehr gering im Vergleich zu den anderen Wärmestromdichten ist, kann sie in dieser Arbeit vernachlässigt werden. Eine ausführlichere Diskussion des Dufour-Effekts findet sich in [12, 51, 66].

### 2.2.3 Das Ficksche Gesetz

Ebenso wie die Wärmestromdichte setzen sich die Diffusionsstromdichten aus drei wesentlichen Anteilen zusammen.

$$\vec{j}_i = \vec{j}_{i,d} + \vec{j}_{i,T} + \vec{j}_{i,p} \quad (2.46)$$

Für die Massendiffusion (Ficksche Diffusion) gilt nach dem Fickschen Gesetz [12]

$$\vec{j}_{i,d} = \rho_i \vec{v}_i^D = \frac{\rho M_i}{\bar{M}^2} \sum_{j \neq i} D_{ij}^p M_j \text{grad } x_j \quad . \quad (2.47)$$

$\vec{v}_i^D$  bezeichnet hierbei die Diffusionsgeschwindigkeit der Spezies  $i$ ,  $M_i$  die molare Masse der Spezies  $i$ ,  $\bar{M}$  die mittlere molare Masse der Mischung,  $D_{ij}^p$  die polynären Diffusionskoeffizienten der Spezies  $i$  und  $j$  und  $x_j$  den Molenbruch der Spezies  $j$ . Die Diffusionsstromdichten können durch die Näherung von Curtiss und Hirschfelder [51] unter Einführung der effektiven Diffusionskoeffizienten  $D_i^D$  ausgedrückt werden durch

$$\vec{j}_{i,d} = -\rho \frac{w_i}{x_i} D_i^D \text{grad } x_i \quad . \quad (2.48)$$

Eine äquivalente Formulierung hierzu ist [12]

$$\vec{j}_{i,d} = -\rho D_i^D \text{grad } w_i \quad , \quad (2.49)$$

wobei  $w_i$  den Massenbruch der Spezies  $i$  darstellt.

Aus der kinetischen Theorie für Gase folgt für den Anteil der Thermodiffusion  $\vec{j}_{i,T}$  an der Diffusionsstromdichte (Soret-Effekt) [12]

$$\vec{j}_{i,T} = -\rho \frac{w_i}{x_i} D_i^T \text{grad } (\ln T) \quad . \quad (2.50)$$

Der Anteil der Druckdiffusion  $\vec{j}_{i,p}$  ist sehr gering, falls keine starken Druckgradienten im beobachteten System vorliegen [12]. Deshalb kann der Einfluss der Druckdiffusion in dieser Arbeit vernachlässigt werden.

Bei der Verwendung der oben genannten Näherungen ist zu beachten, dass sich die Diffusionsströme nicht notwendigerweise zu null addieren, was aufgrund der Massenerhaltung gewährleistet sein muss. Um diese Massenerhaltung zu garantieren, wird der Korrekturterm

$$\vec{j}_{corr} = - \sum_i \vec{j}_i \quad (2.51)$$

eingeführt [66]. Der Korrekturterm wird dabei anteilmäßig, gewichtet mit den Massenbrüchen, zu den Diffusionsstromdichten der einzelnen Spezies addiert.

## 2.2.4 Das ideale Gasgesetz

Zusätzlich zu den bisher erwähnten empirischen Gesetzen wird zur Schließung des Gleichungssystems noch eine thermische Zustandsgleichung benötigt, die den Zusammenhang der Zustandgrößen  $p$ ,  $T$ , und  $\rho$  beschreibt. Für die mathematische Formulierung der thermischen Zustandsgleichung für reale Gase gibt es verschiedene Ansätze, wie z. B. die van der Waals-Gleichung oder Virialentwicklungen [126]. Charakteristisch für die in dieser Arbeit beschriebenen Verbrennungsprozesse sind hohe Temperaturen, für die der Realgasfaktor

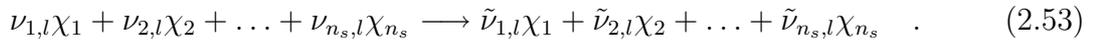
nahe eins liegt [134]. Dadurch ist gewährleistet, dass bei der Verwendung des idealen Gasgesetzes

$$p(\rho, T) = \frac{\rho}{M} RT \quad (2.52)$$

als thermische Zustandsgleichung eine hinreichende Genauigkeit erreicht wird [25, 106].  $R$  bezeichnet dabei die allgemeine Gaskonstante.

### 2.2.5 Die chemischen Produktionsterme

Die in chemisch reagierenden Systemen ablaufenden Prozesse lassen sich durch eine Menge von Elementarreaktionen beschreiben. Dabei wird eine chemische Reaktion, die durch den Index  $l$  identifiziert wird, beschrieben durch [66]



Hierbei sind  $\nu_{i,l}$  bzw.  $\tilde{\nu}_{i,l}$  die stöchiometrischen Faktoren der Edukte bzw. Produkte der Reaktion  $l$ . Die  $\chi_i$  stellen die Speziessymbole dar, und  $n_s$  bezeichnet die Anzahl der Spezies. Die molare Bildungsgeschwindigkeit  $\dot{\omega}_i$  der Spezies  $i$  aus (2.4) ergibt sich als Summe der Geschwindigkeiten  $\dot{r}_l$  aller  $n_r$  Elementarreaktionen multipliziert mit der Differenz der stöchiometrischen Koeffizienten der jeweiligen Spezies.

$$\dot{\omega}_i = \sum_{l=1}^{n_r} (\tilde{\nu}_{i,l} - \nu_{i,l}) \dot{r}_l \quad (2.54)$$

Handelt es sich bei dem betrachteten Reaktionsmechanismus um ein System bestehend aus Elementarreaktionen, so gilt für die Geschwindigkeit einer Reaktion  $l$

$$\dot{r}_l = k_l \prod_{i=1}^{n_s} c_i^{\nu_{i,l}} \quad (2.55)$$

Die  $c_i$  bezeichnen dabei die Konzentrationen der einzelnen Spezies.  $k_l$  ist der Geschwindigkeitskoeffizient der Reaktion  $l$ , dessen Temperaturabhängigkeit durch ein modifiziertes Arrheniusgesetz [66, 138]

$$k_l(T) = A_l T^{\beta_l} \exp\left(\frac{-E_{a,l}}{RT}\right) \quad (2.56)$$

mit dem präexponentiellen Faktor  $A_l$ , dem Temperaturexponent  $\beta_l$  und der Aktivierungsenergie  $E_{a,l}$  beschrieben wird.

Die Geschwindigkeitskoeffizienten von manchen Elementarreaktionen sind unter bestimmten Bedingungen nicht nur temperaturabhängig sondern auch druckabhängig. Die einfachste Form der Darstellung dieser Druckabhängigkeit ist der Lindemann-Ansatz. Dazu werden die Geschwindigkeitskoeffizienten im Hoch- ( $k_\infty$ ) und im Niederdruck-Grenzfall ( $k_0$ ) benötigt.

$$k_{\infty} = A_{\infty} T^{\beta_{\infty}} \exp\left(\frac{-E_{a,\infty}}{RT}\right) \quad (2.57)$$

$$k_0 = A_0 T^{\beta_0} \exp\left(\frac{-E_{a,0}}{RT}\right) \quad (2.58)$$

Für den Geschwindigkeitskoeffizienten  $k$  bei einem beliebigen Druck gilt

$$k = k_{\infty} \left( \frac{P_r}{1 + P_r} \right) F \quad , \quad (2.59)$$

wobei  $P_r$  den reduzierten Druck bezeichnet, für den gilt

$$P_r = \frac{k_0 c_M}{k_{\infty}} \quad . \quad (2.60)$$

$c_M$  bezeichnet die Konzentration der Mischung. Im Fall der Beschreibung von druckabhängigen Reaktionen in der Lindemann-Form ist der Faktor  $F$  in Gleichung (2.59) gleich eins. Eine Erweiterung der Lindemann-Form stellt die Troe-Form [42] dar. Dabei ist der Faktor  $F$  ebenfalls druckabhängig.

$$\log_{10} F = \frac{\log_{10} F_c}{1 + \left( \frac{\log_{10} P_r + c}{n - d(\log_{10} P_r + c)} \right)^2} \quad (2.61)$$

Die in Gleichung (2.61) auftretenden Konstanten  $c$ ,  $n$ ,  $d$  und  $F_c$  sind gegeben durch

$$c = -0.4 - 0.67 \log_{10} F_c \quad (2.62)$$

$$n = 0.75 - 1.27 \log_{10} F_c \quad (2.63)$$

$$d = 0.14 \quad (2.64)$$

$$F_c = (1 - a) \exp(-T/T^{***}) + a \exp(-T/T^*) + \exp(-T^{**}/T) \quad (2.65)$$

Somit werden druckabhängige Reaktionen in der Troe-Form durch zehn Parameter ( $k_{\infty}$  (3),  $k_0$  (3),  $a$ ,  $T^{***}$ ,  $T^*$ ,  $T^{**}$ ) anstatt durch drei Parameter im Fall der gewöhnlichen Elementarreaktionen beschrieben.

## 2.3 Stoffeigenschaften

Die in Abschnitt 2.2 beschriebenen phänomenologischen Gleichungen enthalten verschiedene Stoffgrößen, die sowohl von der Spezieszusammensetzung des Gemisches als auch von der Temperatur abhängen. Im folgenden werden die zur Bestimmung dieser Stoffgrößen relevanten Relationen dargestellt.

### 2.3.1 Stoffeigenschaften in der Gasphase

In der Gasphase handelt es sich bei den oben erwähnten Stoffgrößen um die thermodynamischen Größen, i. e. die spezifische Enthalpie  $h$  und die spezifische Wärmekapazität  $c_p$ , sowie um die Transportkoeffizienten, i. e. den Viskositätskoeffizienten  $\mu$ , den Wärmeleitfähigkeitskoeffizienten  $\lambda$ , die Diffusionskoeffizienten  $D_i^D$  sowie die Thermodiffusionskoeffizienten  $D_i^T$ . Die Berechnung der Transportkoeffizienten basiert auf der kinetischen Theorie verdünnter Gase. Die für die aufgeführten Stoffgrößen verwendeten Relationen sind in [66, 138] ausführlich dargestellt.

Zudem werden noch die Parameter  $A_l$ ,  $\beta_l$  und  $E_{a,l}$  zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der einzelnen chemischen Reaktionen benötigt. Diese werden in Form eines Reaktionsmechanismus bereitgestellt, der die zur Beschreibung der Verbrennung eines oder mehrerer Brennstoffe notwendigen Spezies und Elementarreaktionen enthält. Da in dieser Arbeit die Zündung und Verbrennung verschiedener Brennstoffe untersucht wird, kommen verschiedene detaillierte Reaktionsmechanismen zum Einsatz. Die chemische Kinetik der Verbrennung von Methanol wird durch einen Reaktionsmechanismus bestehend aus 23 chemischen Spezies und 166 Elementarreaktionen von Chevalier und Warnatz [138] modelliert, die chemische Kinetik der Verbrennung von Ethanol wird durch einen Reaktionsmechanismus von Marinov [75] (57 chemische Spezies, 766 Elementarreaktionen) modelliert. Die Reaktionsmechanismen zur Modellierung der Verbrennung von n-Heptan (56 chemische Spezies, 570 Elementarreaktionen) und iso-Oktan (84 chemische Spezies, 824 Elementarreaktionen) stammen von Golovitchev [43]. Zudem wird zur Modellierung der chemischen Kinetik von n-Heptan/iso-Oktan-Mischungen ein Reaktionsmechanismus von Ahmed et al. [5] (94 chemische Spezies, 614 Elementarreaktionen) verwendet. Zur Simulation der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels wird zur Modellierung der chemischen Kinetik in der Gasphase ein Reaktionsmechanismus von Maas und Warnatz [69] (13 chemische Spezies, 72 Elementarreaktionen) verwendet. Zusätzlich werden die Oberflächenreaktionen des Kohlenstoffpartikels mit dem Reaktionsmechanismus von Bradley et al. [15] (10 chemische Spezies, 6 Oberflächenreaktionen) bzw. dem Reaktionsmechanismus von Libby und Blake [64] (6 chemische Spezies, 3 Oberflächenreaktionen) modelliert.

### 2.3.2 Stoffeigenschaften in der Flüssigphase

In der flüssigen Phase werden Relationen zur Berechnung der Temperaturabhängigkeit der Dichte, der spezifischen Wärmekapazität, der Diffusionskoeffizienten der Spezies, der Viskosität sowie der Wärmeleitfähigkeit benötigt. Die folgenden empirischen Korrelationen für die erwähnten Stoffgrößen werden in [101] von Reid et al. detailliert beschrieben. Die teilweise stoffspezifischen Parameter, die für die Korrelationen benötigt werden, finden sich in [101, 144]. Bei der Bestimmung der Stoffeigenschaften der Mischung aus den Stoffeigenschaften der einzelnen Spezies wird davon ausgegangen, dass eine ideale Mischung der

einzelnen Spezies vorliegt. Das in diesem Kapitel beschriebene Modell ist jedoch prinzipiell unter Verwendung der geeigneten Stoffeigenschaften auf nicht ideale Mischungen der einzelnen Spezies erweiterbar.

### Dichte

Zur Bestimmung der Dichte der flüssigen Phase wird die Hankinson-Brost-Thomson (HBT) Technik verwendet. Dazu wird das spezifische molare Volumen  $\bar{V}_S$  der Flüssigkeit im Sättigungszustand berechnet.

$$\frac{\bar{V}_S}{V^*} = V_R^{(0)} \left[ 1 - \omega_{SRK} V_R^{(\delta)} \right] \quad (2.66)$$

$$V_R^{(0)} = 1 + a(1 - T_r)^{\frac{1}{3}} + b(1 - T_r)^{\frac{2}{3}} + c(1 - T_r) + d(1 - T_r)^{\frac{4}{3}} \quad (2.67)$$

$$V_R^{(\delta)} = \frac{e + fT_r + gT_r^2 + hT_r^3}{T_r - 1.00001} \quad (2.68)$$

Dabei sind  $a, b, c, d, e, f, g$  und  $h$  Konstanten mit den Werten [101]

$$a = -1.52816 \quad (2.69) \quad e = -0.296123 \quad (2.73)$$

$$b = 1.43907 \quad (2.70) \quad f = 0.386914 \quad (2.74)$$

$$c = -0.81446 \quad (2.71) \quad g = -0.0427258 \quad (2.75)$$

$$d = 0.190454 \quad (2.72) \quad h = -0.0480645 \quad (2.76)$$

$T_r$  bezeichnet die reduzierte Temperatur

$$T_r = \frac{T}{T_c} \quad (2.77)$$

mit der kritischen Temperatur  $T_c$ . Bei dem charakteristischen Volumen  $V^*$  und dem azen-trischen Faktor  $\omega_{SRK}$  handelt es sich um stoffspezifische Größen, die in [101] aufgeführt sind.

Für das spezifische molare Volumen  $\bar{V}_i$  der Spezies  $i$  gilt

$$\bar{V}_i = V_s \left( 1 - c' \ln \frac{\beta + p}{\beta + p_{vap}} \right) \quad (2.78)$$

wobei die Parameter  $\beta$  und  $c'$  folgendermaßen berechnet werden.

$$\beta = p_c \left( -1 + a'(1 - T_r)^{1/3} + b'(1 - T_r)^{2/3} + d'(1 - T_r) + e'(1 - T_r)^{4/3} \right) \quad (2.79)$$

$$e' = \exp(f' + g'\omega_{SRK} + h'\omega_{SRK}^2) \quad (2.80)$$

$$c' = j' + k'\omega_{SRK} \quad (2.81)$$

$p_c$  bezeichnet den kritischen Druck,  $a'$ ,  $b'$ ,  $d'$ ,  $f'$ ,  $g'$ ,  $h'$ ,  $j'$  und  $k'$  sind Konstanten mit den Werten [101]

$$a' = -9.070217 \quad (2.82) \quad g' = 0.250047 \quad (2.86)$$

$$b' = 62.45326 \quad (2.83) \quad h' = 1.14188 \quad (2.87)$$

$$d' = -135.1102 \quad (2.84) \quad j' = 0.0861488 \quad (2.88)$$

$$f' = 4.79594 \quad (2.85) \quad k' = 0.0344483 \quad (2.89)$$

Die Dichte einer bestimmten Spezies in der flüssigen Phase ergibt sich aus der molaren Masse und dem spezifischen molaren Volumen der Spezies.

$$\rho_i = \frac{M_i}{\bar{V}_i} \quad (2.90)$$

Für die Dichte  $\rho$  einer flüssigen Mischung aus  $n_s$  einzelnen Spezies gilt

$$\rho = \frac{1}{\sum_{i=1}^{n_s} w_i \rho_i} \quad (2.91)$$

### Spezifische Wärmekapazität

Zur Berechnung der spezifischen Wärmekapazität einer Flüssigkeit wird zunächst die spezifische Wärmekapazität  $c_{p,i}^0$  derselben Spezies, wenn sie als ideales Gas vorliegt, berechnet.

$$c_{p,i}^0 = a + bT + cT^2 + dT^3 \quad (2.92)$$

$a$ ,  $b$ ,  $c$  und  $d$  sind stoffspezifische Konstanten. Nach Rowlinson und Bondi kann die Wärmekapazität  $c_{p,i}^l$  derselben Spezies im flüssigen Zustand durch

$$\begin{aligned} \frac{c_{p,i}^l - c_{p,i}^0}{R} &= 1.45 + 0.45 (1 - T_r)^{-1} \\ &+ 0.25\omega_{aP} \left[ 17.11 + 25.2 (1 - T_r)^{1/3} T_r^{-1} + 1.742 (1 - T_r)^{-1} \right] \end{aligned} \quad (2.93)$$

berechnet werden. Der azentrische Faktor nach Pitzer  $\omega_{aP}$  ist ebenfalls ein stoffspezifischer Parameter. Da es sich bei der spezifischen Wärmekapazität um eine massenspezifische Größe handelt, gilt für die spezifische Wärmekapazität  $c_p^l$  einer Mischung

$$c_p^l = \sum_{i=1}^{n_s} w_i c_{p,i}^l \quad (2.94)$$

### Diffusionskoeffizienten

Nach Tyn und Calus gilt für den Diffusionskoeffizienten  $D_{AB}^\circ$  einer gelösten Spezies A im Lösungsmittel B

$$D_{AB}^\circ = 8.93 \cdot 10^{-12} \frac{\bar{V}_{b,B}^{0.267} T}{\bar{V}_{b,A}^{0.433} \nu_B \sigma_A} \left( \frac{\sigma_B}{\sigma_A} \right)^{0.15}, \quad (2.95)$$

wobei die gelöste Spezies A in sehr geringer Konzentration vorliegt. In die Berechnung dieses Diffusionskoeffizienten gehen die spezifischen molaren Volumina beider Spezies  $\bar{V}_b$  und die Oberflächenspannungen  $\sigma$  beider Spezies am Siedepunkt sowie die Viskosität der Spezies B  $\nu_B$ , deren Bestimmung im nächsten Abschnitt erläutert wird, ein. Das spezifische molare Volumen  $\bar{V}_b$  einer Spezies am Siedepunkt kann mit Hilfe der oben erläuterten Hankinson-Brost-Thomson Technik zur Berechnung der Dichte bestimmt werden. Die Oberflächenspannung einer Spezies am Siedepunkt wird nach der Methode von Brock und Bird berechnet.

$$\sigma = p_c^{2/3} T_c^{1/3} (0.132\alpha_c - 0.278) (1 - T_{r,b})^{11/9} \quad (2.96)$$

Dabei gilt für die reduzierte Siedetemperatur  $T_{r,b}$  und den Parameter  $\alpha_c$

$$T_{r,b} = \frac{T_b}{T_c} \quad (2.97)$$

$$\alpha_c = 0.9076 \left[ 1 + \frac{T_{r,b} \ln(p_c/1.013 \text{ bar})}{1 - T_{r,b}} \right] . \quad (2.98)$$

Nach Vignes lässt sich aus den Diffusionskoeffizienten der verdünnten Lösungen  $D_{AB}^\circ$  und  $D_{BA}^\circ$  der Diffusionskoeffizient einer binären Mischung beliebiger Konzentration  $D_{AB}$  bestimmen.

$$D_{AB} = ((D_{AB}^\circ)^{x_B} (D_{BA}^\circ)^{x_A}) \cdot \alpha \quad (2.99)$$

Durch den thermodynamischen Korrekturfaktor  $\alpha$  können die Auswirkungen einer nicht idealen Mischung auf den Diffusionskoeffizienten berücksichtigt werden. Da in dieser Arbeit ausschließlich ideale Mischungen untersucht werden, soll  $\alpha = 1$  gelten.

Zur Bestimmung von effektiven Diffusionskoeffizienten einer Spezies in einer Mischung aus mehreren Spezies liegen bislang keine praktikablen Methoden vor [101].

### Viskosität

Wie schon im vorigen Abschnitt erwähnt werden zur Bestimmung der Diffusionskoeffizienten in Gleichung (2.95) die Viskositäten der Spezies benötigt. Zur Bestimmung der Viskosität einer Spezies wird auf zwei unterschiedliche Korrelationen zurückgegriffen. Im Hochtemperaturbereich (HT,  $T_r \geq 0.75$ ) liefert die Korrelation von Letsou und Stiel die besseren

Resultate. Im Niedertemperaturbereich (NT,  $T_r < 0.75$ ) wird die Korrelation von Brulé und Starling verwendet.

Im Hochtemperaturbereich gilt für die Viskosität  $\nu_i^{HT}$  der Spezies  $i$

$$\nu_i^{HT} \xi = 10^{-3} (\eta_L \xi)^{(0)} + \omega_{aP} (\eta_L \xi)^{(1)} \quad (2.100)$$

mit den Parametern

$$(\eta_L \xi)^{(0)} = 10^{-3} (2.648 - 3.725 T_r + 1.309 T_r^2) \quad (2.101)$$

$$(\eta_L \xi)^{(1)} = 10^{-3} (7.425 - 13.39 T_r + 5.933 T_r^2) \quad (2.102)$$

$$\xi = 0.176 \left( \frac{T_c}{M_i^3 p_c^4} \right)^{1/6} . \quad (2.103)$$

Im Niedertemperaturbereich wird die Viskosität  $\nu_i^{NT}$  nach der Erweiterung von Brulé und Starling der Chung et al. Methode bestimmt durch

$$\nu_i^{LT} = 10^{-3} \nu^* \frac{36.344 (M_i T_c)^{1/2}}{\bar{V}_c^{2/3}} . \quad (2.104)$$

Neben dem kritischen molaren Volumen  $\bar{V}_c$  werden zur Berechnung noch die folgenden Parameter benötigt

$$\nu^* = \frac{T^{*1/2}}{\Omega_\nu} [F_c (G_2^{-1} + E_6 y)] + \nu^{**} \quad (2.105)$$

$$\nu^{**} = y^2 E_7 G_2 \exp[E_8 + E_9 (T^*)^{-1} + E_{10} (T^*)^{-2}] \quad (2.106)$$

$$G_2 = \frac{E_1 [1 - \exp(-E_4 y)] / y + E_2 G_1 \exp(E_5 y) + E_3 G_1}{E_1 E_4 + E_2 + E_3} \quad (2.107)$$

$$G_1 = \frac{1 - 0.5y}{(1 - y)^3} \quad (2.108)$$

$$y = \frac{1}{6} \frac{\rho_i \bar{V}_c^*}{M_i} \quad (2.109)$$

$$F_c = 1 - 0.2756 \cdot \omega_{aP} + 0.059035 \cdot \mu_r^4 + \kappa \quad (2.110)$$

$$\Omega_\nu = 1.16145 \cdot (T^*)^{-0.14874} + 0.52487 \cdot \exp(-0.7732 \cdot T^*) \\ + 2.16178 \cdot \exp(-2.43787 \cdot T^*) \quad (2.111)$$

$$T^* = 1.2593 \cdot T_r \quad (2.112)$$

$E_1$  bis  $E_{10}$  bezeichnen Konstanten, die lediglich linear von dem azentrischen Faktor  $\omega_{aP}$  der Spezies abhängen [101].  $\mu_r$  ist ein reduziertes Dipolmoment, das folgendermaßen definiert ist.

$$\mu_r = 131.3 \frac{\mu}{(\bar{V}_c T_c)^{1/2}} \frac{(\text{cm}^3/\text{mol K})^{(1/2)}}{\text{Debye}} \quad (2.113)$$

Der Assoziationsfaktor  $\kappa$  stellt einen speziellen Korrekturparameter für stark polare Spezies, wie Alkohole und Säuren, dar.

Da sich die physikalischen Eigenschaften von flüssigem Wasser grundlegend von der Mehrheit der anderen Flüssigkeiten unterscheiden, liefern die obigen Relationen nur unzureichende Werte für Wasser. Aus diesem Grund wird die Viskosität von Wasser mit der Korrelation von Van Velzen, Yaws und Duhne [101] bestimmt.

$$\nu_{\text{H}_2\text{O}} = \exp\left(-24.71 + 4209 \cdot (T/\text{K})^{-1} + 0.04527 \cdot (T/\text{K}) - 3.376 \cdot 10^{-5} (T/\text{K})^2\right) \text{ cP} \quad (2.114)$$

### Wärmeleitfähigkeit

Die Methode von Latini et al. liefert für die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_i$  einer flüssigen Spezies

$$\lambda_i = \frac{A(1 - T_r)^{0.38}}{T_r^{1/6}} \quad . \quad (2.115)$$

Der stoffspezifische Parameter  $A$  ist dabei gegeben durch

$$A = \frac{A^* T_b^\alpha}{M_i^\beta T_c^\gamma} \quad , \quad (2.116)$$

wobei  $A^*$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  stoffabhängige Konstanten sind.

Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  einer Mischung aus  $n_s$  flüssigen Spezies wird entsprechend der Methode von Li bestimmt durch

$$\lambda = \sum_{i=1}^{n_s} \sum_{j=1}^{n_s} \varphi_i \varphi_j \lambda_{ij} \quad , \quad (2.117)$$

wobei für  $\varphi_i$  und  $\lambda_{ij}$  gilt

$$\varphi_i = \frac{x_i \bar{V}_i}{\sum_j x_j \bar{V}_j} \quad (2.118)$$

$$\lambda_{ij} = 2(\lambda_i^{-1} + \lambda_j^{-1})^{-1} \quad . \quad (2.119)$$

### 2.3.3 Stoffeigenschaften an der Phasengrenze

Zur Modellierung der Phasengrenze ist die Kenntnis des Dampfdrucks und der Verdampfungsenthalpie notwendig. Eine ausführliche Beschreibung der verwendeten Korrelationen findet sich in [101]. Die teilweise stoffspezifischen Parameter, die für die Korrelationen benötigt werden, finden sich in [101, 144]. Wird zudem der Wärmeverlust durch Strahlung an der Oberfläche modelliert, muss zusätzlich das Emissionsvermögen bestimmt werden.

## Dampfdruck

Der Dampfdruck  $p_{vap,i}$  der Spezies  $i$  ist nach Wagner gegeben durch

$$\ln \left( \frac{p_{vap,i}}{p_c} \right) = (1 - T_x)^{-1} (aT_x + bT_x^{3/2} + cT_x^3 + dT_x^6) \quad (2.120)$$

$$T_x = 1 - \frac{T}{T_c} \quad . \quad (2.121)$$

Die Koeffizienten  $a$  bis  $d$  stellen stoffspezifische Größen dar. Liegen diese Koeffizienten für eine Spezies nicht vor, wird alternativ der Dampfdruck mit der Antoine-Korrelation

$$\ln \left( \frac{p_{vap,i}}{\text{Pa}} \right) = A - \frac{B}{(T/\text{K}) + C} \quad (2.122)$$

berechnet, in die die stoffspezifischen Parameter  $A$ ,  $B$  und  $C$  eingehen.

Nach dem Raoult'schen Gesetz gilt für den Dampfdruck  $p_{vap}$  einer idealen Mischung von Flüssigkeiten

$$p_{vap} = \sum_{i=1}^{n_s} x_i p_{vap,i} \quad . \quad (2.123)$$

## Verdampfungsenthalpie

Zur Bestimmung der spezifischen molaren Verdampfungsenthalpie  $\Delta \bar{H}_{V,i}$  einer Spezies wird zunächst die Verdampfungsenthalpie am Siedepunkt unter Normaldruck  $\Delta \bar{H}_{V,b}$  nach Riedel berechnet.

$$\Delta \bar{H}_{V,b,i} = 1.093 \cdot RT_c \left( T_{r,b} \frac{\ln(p_c/\text{bar}) - 1.013}{0.93 - T_{r,b}} \right) \quad (2.124)$$

Die Korrelation von Watson beschreibt den Zusammenhang der Verdampfungsenthalpien bei zwei unterschiedlichen Temperaturen ( $1$ ,  $b$ ).

$$\Delta \bar{H}_{V,1,i} = \Delta \bar{H}_{V,b,i} \left( \frac{1 - T_{r,1}}{1 - T_{r,b}} \right)^n \quad (2.125)$$

Der Exponent  $n$  wird nach Viswanath und Kuloor berechnet mit

$$n = \left( 0.00264 \frac{\Delta \bar{H}_{V,b,i}}{RT_b} + 0.8794 \right)^{10} \quad . \quad (2.126)$$

## 2.4 Modellierung der Flüssigphase

Aufgrund ihres vernachlässigbaren Einflusses werden bei der Modellierung der Flüssigphase verschiedene Annahmen getroffen.

Bei der Simulation eines ruhenden Tropfens in einer Gasatmosphäre kann unter der Annahme sphärischer Symmetrie keine konvektive Strömung innerhalb des Tropfens induziert werden. Diese idealisierten Bedingungen können in Experimenten nicht vollständig gewährleistet werden, da aufgrund von Störungen eine innere Zirkulation bzw. Konvektion innerhalb des Tropfens auftreten kann. Aus diesem Grund werden in dieser Arbeit auch die Auswirkungen einer solchen inneren Zirkulation auf die zu erwartenden Resultate analysiert (siehe Abschnitt 3.3 und 4.8). Aufgrund der geringen Größe der Tropfen weist für die untersuchten Konfigurationen die Reynoldszahl stets einen Wert kleiner als 100 auf. Die obige Annahme ist somit ebenfalls für die Modellierung eines Tropfens in einer äußeren Gasströmung gerechtfertigt. Zudem sorgt die geringe Größe dafür, dass ein konstanter Druck innerhalb des Tropfens angenommen werden kann. Diese Annahmen haben zur Folge, dass sowohl die Kontinuitätsgleichung als auch die Impulserhaltungsgleichung innerhalb des Tropfens trivialerweise erfüllt sind und somit nicht gelöst werden müssen.

Des Weiteren wird angenommen, dass innerhalb des Tropfens keine chemischen Reaktionen stattfinden. Der Wärmeverlust des Tropfens durch Wärmestrahlung wird ebenfalls vernachlässigt. Angesichts der betrachteten chemischen Systeme und der geringen Temperatur des Tropfens sind diese Annahmen gerechtfertigt. Bei der Modellierung der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels hingegen wird der Wärmeverlust des Partikels nicht vernachlässigt, da in diesem Fall aufgrund der Oberflächenreaktionen die Temperatur des Partikels bei weitem die Umgebungstemperatur übersteigt.

Die Stoffdiffusion ist in einer Flüssigkeit, wie auch in einem Feststoff, wesentlich langsamer als die Wärmeleitungsprozesse. Deshalb kann, in erster Näherung, der Anteil der Stoffdiffusion in der Energieerhaltungsgleichung vernachlässigt werden.

Mit den oben beschriebenen Vernachlässigungen ergeben sich in der flüssigen Phase die Erhaltungsgleichung der Speziesmassen

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \operatorname{div} \vec{j}_i = 0 \quad (2.127)$$

und die Energieerhaltungsgleichung, die nun mit der Temperatur als abhängige Variable formuliert wird.

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \frac{1}{\rho c_p} \operatorname{div} \vec{j}_{q,c} = 0 \quad (2.128)$$



# Kapitel 3

## Numerische Simulation

Das Leistungsvermögen numerischer Simulationen ist durch einige Umstände limitiert. So ist eine umfangreiche Kenntnis physikalischer und chemischer Prozesse und Stoffdaten im Vorfeld vonnöten. Numerische Probleme, wie z. B. Diskretisierungsfehler oder Konvergenzprobleme, treten bei der Lösung der das System beschreibenden Gleichungen auf. Durch die vorhandenen Ressourcen an Rechnerleistung und Speicherplatz ist zudem der Umfang der Simulationen limitiert.

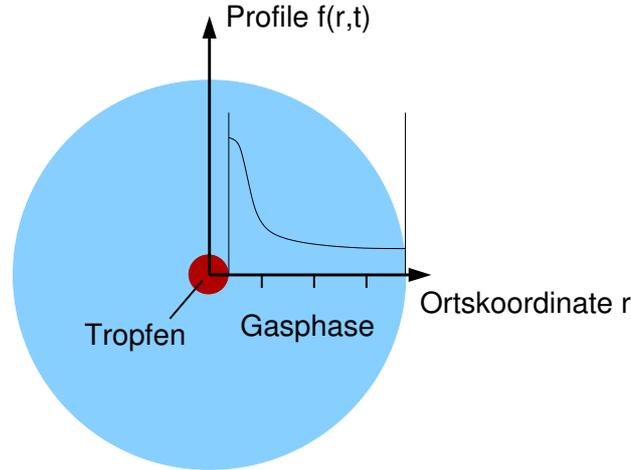
Aus diesem Grund müssen Vereinfachungen in der Modellierung von Verbrennungsprozessen vorgenommen werden. Eine Möglichkeit besteht in der Reduktion der Beschreibung der chemischen Kinetik durch entsprechende Verfahren, wie z. B. Eingleichungsmodelle [92, 138], Fortschrittsvariablen [138] oder ILDM [67, 68], bei vollständiger Modellierung der Strömungs- und Transportphänomene. Im Gegensatz dazu kann unter Beibehaltung einer detaillierten Modellierung der chemischen Kinetik auch eine Reduktion der Raumkoordinaten vorgenommen werden. Das bedeutet, es werden Systeme untersucht, bei denen Inhomogenitäten nur in einer bzw. zwei Raumrichtungen auftreten. Der Ansatz der Reduktion der Raumkoordinaten wird in dieser Arbeit verfolgt. Ein Beispiel für ein eindimensionales System stellt aufgrund der sphärischen Symmetrie ein brennender Kraftstofftropfen in einer ruhenden Gasatmosphäre in Abwesenheit von Gravitation dar. Wird zusätzlich eine äußere Strömung oder Beschleunigung, wie z. B. Gravitation, berücksichtigt, muss eine zweite Raumrichtung miteinbezogen werden.

### 3.1 Eindimensionale instationäre Verbrennungsprozesse

Bei der Betrachtung eindimensionaler instationärer Verbrennungsprozesse reduziert sich die Anzahl der unabhängigen Variablen des Gleichungssystems auf die Ortskoordinate  $r$  und die Zeit  $t$ .

$$\underbrace{f = f(x, y, z, t)}_{3D} \rightarrow \underbrace{f = f(r, t)}_{1D} \quad (3.1)$$

Abbildung 3.1 zeigt das betrachtete System unter der Annahme von sphärischer Symmetrie um den Koordinatenursprung.



**Abbildung 3.1:** Modell des instationären eindimensionalen Verbrennungsprozesses im Fall eines Tropfens

Das resultierende Gleichungssystem für ein System mit sphärischer Symmetrie findet sich in [66]. Um numerische Schwierigkeiten bei der Behandlung der konvektiven Terme zu vermeiden, wird das Gleichungssystem in ein mitbewegtes Koordinatensystem transformiert [66,122]. Die abhängigen Variablen sind somit nicht mehr als Funktion des Ortes  $r$  gegeben, sondern als Funktion der sogenannten Lagrange-Koordinaten  $\psi$ .

$$f(r, t) \rightarrow f(\psi, t) \quad (3.2)$$

$$\psi(r, t) = \int_0^r \rho(r, t) r^2 dr \quad (3.3)$$

Anstatt der transformierten Kontinuitätsgleichung kann auch die Transformationsgleichung gelöst werden [66]. Das partielle Differentialgleichungssystem lautet somit

$$\left( \frac{\partial r}{\partial \psi} \right)_t = \frac{1}{\rho r^2} \quad (3.4)$$

$$\frac{\partial w_i}{\partial t} + z \frac{\partial w_i}{\partial \psi} + \frac{\partial}{\partial \psi} (r^2 j_i) = \frac{\dot{\omega}_i M_i}{\rho} \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{1}{\rho c_p} \frac{\partial p}{\partial t} + z \frac{\partial T}{\partial \psi} - \frac{1}{c_p} \frac{\partial}{\partial \psi} \left( \rho r^4 \lambda \frac{\partial T}{\partial \psi} \right) \\ - \frac{r^2}{c_p} \sum_{i=1}^{n_s} j_i c_{pi} \frac{\partial T}{\partial \psi} + \frac{1}{\rho c_p} \sum_{i=1}^{n_s} \dot{\omega}_i h_i M_i = 0 \end{aligned} \quad (3.6)$$

mit dem Massenbruch  $w_i$ , dem Diffusionsstrom  $j_i$ , der molaren Bildungsrate  $\omega_i$ , der molaren Masse  $M_i$ , der spezifischen Wärmekapazität  $c_{pi}$  und der spezifischen Enthalpie  $h_i$  der Spezies  $i$ , dem Druck  $p$ , der Temperatur  $T$ , der Dichte  $\rho$ , der spezifischen Wärmekapazität  $c_p$  und der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$ .

Durch die Einführung des Wertes  $z$  ist es möglich, das Koordinatensystem an einem bestimmten räumlichen Punkt zu fixieren. Darin unterscheiden sich die hier verwendeten Lagrange-Koordinaten von Standard-Lagrange-Koordinaten, die an ein bestimmtes Volumenelement gebunden sind. Der Wert von  $z$  ergibt sich aus der Bedingung

$$0 = \left( \frac{\partial r}{\partial t} \right)_{\psi} \Big|_{\psi=\psi_0} = v(\psi_0) - \frac{z}{\rho(\psi_0)r_0^2} \quad , \quad (3.7)$$

wobei  $r_0$  z. B. der Tropfenoberfläche  $r_0 = r_D$  entsprechen kann.

Aufgrund der Annahme eines räumlich homogenen Drucks ("low-Mach-number"-Näherung [69]) wird die Impulserhaltungsgleichung ersetzt durch

$$\frac{\partial p}{\partial \psi} = 0 \quad . \quad (3.8)$$

Zur Schließung des Gleichungssystems wird in der Gasphase zudem noch das ideale Gasgesetz verwendet.

$$\rho = \frac{p\bar{M}}{RT} \quad (3.9)$$

Analog zur Gasphase wird das Gleichungssystem in der flüssigen Phase ebenfalls in Lagrange-Koordinaten transformiert. Aufgrund der zeitlich variierenden Tropfenmasse  $m_D(t)$  ist jedoch eine weitere Transformation nötig, um das Koordinatensystem an der Tropfenoberfläche zu fixieren [122].

$$f(r, t) \rightarrow f(\psi, t) \rightarrow f(\eta, t) \quad (3.10)$$

$$\eta = \frac{\psi}{\psi_D^0(t)} \quad (3.11)$$

$$\psi_D^0(t) = \int_0^{r_D(t)} \rho r^2 dr = \frac{m_D(t)}{4\pi} \quad (3.12)$$

Die Transformationsgleichungen der Differentialoperatoren lauten somit

$$\left( \frac{\partial}{\partial \psi} \right)_t = \frac{1}{\psi_D^0} \left( \frac{\partial}{\partial \eta} \right)_t \quad (3.13)$$

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} \right)_{\psi} = \left( \frac{\partial}{\partial t} \right)_{\eta} - \frac{1}{\psi_D^0} (\eta \vartheta^0) \left( \frac{\partial}{\partial \eta} \right)_t \quad (3.14)$$

$$\vartheta^0(t) = \frac{d\psi_D^0}{dt} = -(\phi_{vap} + \phi_{stef}) \cdot r_D^2 \quad , \quad (3.15)$$

wobei  $\phi_{vap}$  den Massenstrom der Verdunstung und  $\phi_{stef}$  den Stefan-Fluss bezeichnet. Daraus folgt für das System der Erhaltungsgleichungen in den transformierten Variablen  $t$  und  $\eta$

$$\left(\frac{\partial r}{\partial \eta}\right)_t = \frac{\psi_D^0}{\rho r^2} \quad (3.16)$$

$$\frac{\partial w_i}{\partial t} - \frac{1}{\psi_D^0} (\eta \vartheta^0) \frac{\partial w_i}{\partial \eta} + \frac{1}{\psi_D^0} \frac{\partial}{\partial \eta} (r^2 j_i) = 0 \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{1}{\psi_D^0} (\eta \vartheta^0) \frac{\partial T}{\partial \eta} - \frac{1}{c_p \psi_D^0} \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \rho r^4 \lambda \frac{1}{\psi_D^0} \frac{\partial T}{\partial \eta} \right) \\ - \frac{r^2}{c_p} \sum_{i=1}^{n_S} j_i c_{pi} \frac{1}{\psi_D^0} \frac{\partial T}{\partial \eta} = 0 \quad . \end{aligned} \quad (3.18)$$

Zur Schließung des Gleichungssystems ist auch in der flüssigen Phase eine Zustandsgleichung

$$\rho = \rho(w_1, \dots, w_{n_S}, p, T) \quad (3.19)$$

für die Dichte  $\rho$  nötig. Diese Zustandsgleichung ist durch Gleichung (2.91) gegeben. Des weiteren müssen Randbedingungen spezifiziert werden, um eine Lösung des Differentialgleichungssystems zu ermöglichen. Im Zentrum des Tropfens werden dazu Symmetriestandbedingungen angenommen.

$$\eta = 0 : \quad r = 0, \quad \frac{\partial w_i}{\partial \eta} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial \eta} = 0 \quad (3.20)$$

Da es sich um ein offenes, isobares System handelt, folgt für die Randbedingungen am äußeren Rand

$$\psi = \psi_o : \quad \frac{\partial r}{\partial \psi} = \frac{1}{\rho r^2}, \quad w_i = w_{i,o}, \quad T = T_o \quad . \quad (3.21)$$

Anstelle der Dirichlet-Randbedingungen für die Massenbrüche und die Temperatur  $w_i = w_{i,o}$ ,  $T = T_o$  können auch die entsprechenden Neumann-Randbedingungen  $\frac{\partial w_i}{\partial \psi} = 0$ ,  $\frac{\partial T}{\partial \psi} = 0$  benutzt werden. Somit kann ein abgeschlossenes System simuliert werden, an dessen Rand weder ein Massen- noch ein Energieaustausch mit der Umgebung stattfindet.

Die Kopplung der flüssigen und der gasförmigen Phase wird durch das Verdunstungsmodell (Abschnitt 2.1.2) gewährleistet. Die Randbedingungen am Phasenübergang werden folglich durch die Gleichungen (2.19), (2.20), (2.22), (2.23), (2.31) und (2.32) dargestellt.

Das System partieller Differentialgleichungen wird mittels der ‘‘Method of lines’’ in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen überführt. Es wird die Ortskoordinate  $\psi$  bzw.  $\eta$  unter Verwendung finiter Differenzen diskretisiert. In der Gasphase werden zentrale Differenzen auf einem nicht äquidistanten Gitter verwendet. Aufgrund der unterschiedlichen

Längenskalen, die bei instationären Verbrennungsprozessen auftreten, ist das Rechengitter zeitlich nicht konstant. Vielmehr wird es durch ein “Regridding“-Verfahren, das auf einer Gitterfunktion basiert [66, 69], während der Simulation verändert. Das “Regridding“-Verfahren gewährleistet eine ausreichend hohe Anzahl an Gitterpunkten in den Regionen, in denen steile Gradienten und starke Krümmungen der Profile auftreten. Das Verfahren zur Interpolation der abhängigen Variablen auf das neue Rechengitter basiert auf der kubisch Hermiten Interpolation, wobei Nebenbedingungen die Monotonie zwischen benachbarten Gitterpunkten erzwingen [39]. In der flüssigen Phase wird das Differentialgleichungssystem ebenfalls auf einem nicht äquidistanten Gitter diskretisiert. Das Gitter ist zum Mittelpunkt und zur Oberfläche des Tropfens hin verfeinert, da dort die steilsten Gradienten der Profile im Tropfen auftreten.

Durch die Diskretisierung im Raum erhält man ein System von gewöhnlichen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen. Zur Lösung dieses Systems wird ein implizites Lösungsverfahren verwendet, das durch die chemische Kinetik bedingte Steifheit des differentiell-algebraischen Gleichungssystems erforderlich ist. Hierzu wird das linear implizite Extrapolationsverfahren LIMEX [28] verwendet.

Zur Durchführung der Simulationen wurde das bestehende Simulationstool INSFLA [66, 70] erweitert. INSFLA ermöglicht die Simulation von instationären, räumlich eindimensionalen Verbrennungsprozessen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Modellierung der kondensierten Phase und der Phasengrenze in das bestehende Simulationstool implementiert [34, 65, 109]. Somit erlaubt INSFLA nun auch die Simulation von instationären Verbrennungsprozessen in Mehrphasensystemen.

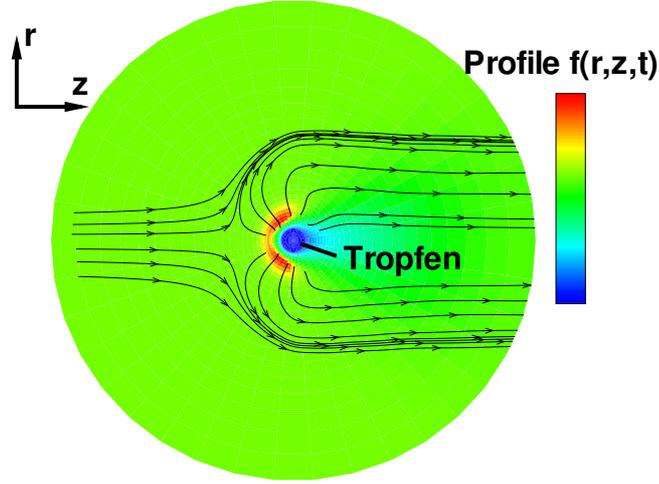
## 3.2 Zweidimensionale instationäre Verbrennungsprozesse

Bei der Modellierung räumlich zweidimensionaler Verbrennungsprozesse reduziert sich die Anzahl der unabhängigen Variablen des Gleichungssystems auf drei.

$$\underbrace{f = f(x, y, z, t)}_{3D} \rightarrow \underbrace{f = f(r, z, t)}_{2D} \quad (3.22)$$

Abbildung 3.2 zeigt das betrachtete System. Die Reduktion der Raumkoordinaten wird durch die Annahme der Rotationssymmetrie um die z-Achse erreicht. Es wird davon ausgegangen, dass der Tropfen zu jeder Zeit eine perfekt kugelsymmetrische Form aufweist und dass das Strömungsfeld laminar und rotationssymmetrisch ist.

Aus der Annahme der Rotationssymmetrie um die z-Achse ergibt sich das System der Erhaltungsgleichungen für die betrachteten instationären zweidimensionalen Verbrennungsprozesse [12]



**Abbildung 3.2:** Modell der instationären zweidimensionalen Verbrennungsprozesse im Fall eines Tropfens

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho r v_r) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho v_z) = 0 \quad (3.23)$$

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho_i r v_r) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho_i v_z) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r(j_i)_r) + \frac{\partial}{\partial z}((j_i)_z) = M_i \dot{\omega}_i \quad (3.24)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho v_r)}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho r v_r v_r) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho v_r v_z) + \frac{\partial p}{\partial r} \\ + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r \Pi_{rr}) - \frac{\Pi_{\phi\phi}}{r} + \frac{\partial}{\partial z}(\Pi_{rz}) = \rho g_r \end{aligned} \quad (3.25)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho v_z)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r}(\rho r v_r v_z) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho v_z v_z) + \frac{\partial p}{\partial z} \\ + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r \Pi_{rz}) + \frac{\partial}{\partial z}(\Pi_{zz}) = \rho g_z \end{aligned} \quad (3.26)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho r u v_r) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho u v_z) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r(j_q)_r) + \frac{\partial}{\partial z}((j_q)_z) \\ + p \left( \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r v_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) \\ + \Pi_{rr} \frac{\partial v_r}{\partial r} + \Pi_{\phi\phi} \frac{1}{r} \frac{v_r}{r} + \Pi_{zz} \frac{\partial v_z}{\partial z} + \Pi_{rz} \left( \frac{\partial v_r}{\partial z} + \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) = 0 \quad . \end{aligned} \quad (3.27)$$

Die Komponenten des Schubspannungstensors  $\Pi$  lauten [12]

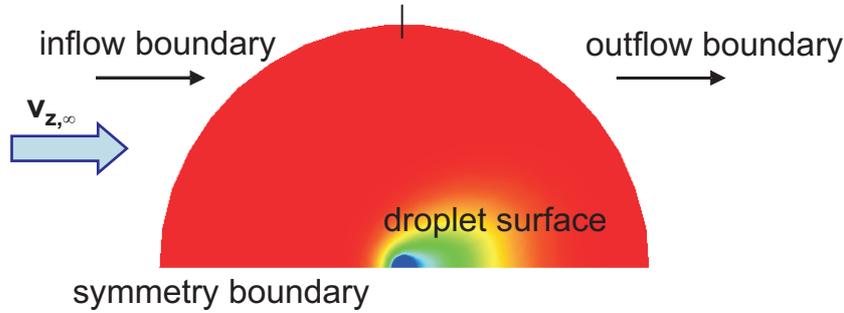
$$\Pi_{rr} = -\mu \left( 2 \frac{\partial v_r}{\partial r} - \frac{2}{3} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r v_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) \right) \quad (3.28)$$

$$\Pi_{\phi\phi} = -\mu \left( 2\frac{v_r}{r} - \frac{2}{3} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) \right) \quad (3.29)$$

$$\Pi_{zz} = -\mu \left( 2\frac{\partial v_z}{z} - \frac{2}{3} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) \right) \quad (3.30)$$

$$\Pi_{rz} = -\mu \left( \frac{\partial v_r}{\partial z} + \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) \quad (3.31)$$

Wie in Abschnitt 3.1 ist es auch hier zur Lösung des Gleichungssystems notwendig, Randbedingungen zu spezifizieren. Aufgrund der Rotationssymmetrie des Systems ist es ausreichend, lediglich die obere Hälfte des in Abbildung 3.2 gezeigten Gebiets zu berechnen, da die untere Hälfte durch Spiegelung an der z-Achse erhalten werden kann. Somit ergibt sich das in Abbildung 3.3 gezeigte Rechengebiet.



**Abbildung 3.3:** Rechengebiet und zugehörige Ränder für den Fall des zweidimensionalen Verbrennungsprozesses eines Tropfens

In Abbildung 3.3 sind ebenfalls die vier Ränder des Rechengebiets dargestellt, die unterschiedliche Spezifikationen von Randbedingungen erfordern. Der Anströmrand wird durch die folgenden Dirichlet-Bedingungen charakterisiert.

$$\rho = \rho_\infty, \quad v_r = 0, \quad v_z = v_{z,\infty}, \quad w_i = w_{i,\infty}, \quad T = T_\infty \quad (3.32)$$

Am Ausströmrand hingegen lauten die Randbedingungen

$$\frac{\partial p}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial v_r}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial w_i}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial z} = 0 \quad (3.33)$$

Analog zu den in Abschnitt 3.1 beschriebenen Randbedingungen werden am Symmetrierand ( $r = 0$ ) die folgenden Randbedingungen verwendet.

$$r = 0 : \quad \frac{\partial \rho}{\partial r} = 0, \quad v_r = 0, \quad \frac{\partial v_z}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial w_i}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad (3.34)$$

Die Kopplung der flüssigen und der gasförmigen Phase wird durch das Verdunstungsmodell (Abschnitt 2.1.2) gewährleistet. Die Randbedingungen am Phasenübergang werden somit durch die Gleichungen (2.19), (2.20), (2.22), (2.23), (2.31) und (2.32) dargestellt.

Das System partieller Differentialgleichungen wird, wie schon im Fall der eindimensionalen Verbrennungsprozesse, mittels der ‘‘Method of lines‘‘ in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen überführt.

Um eine detaillierte Modellierung der Phasengrenze zu gewährleisten, ist ein Rechengitter erforderlich, das der abzubildenden Oberfläche angepasst ist. Aus diesem Grund erfolgt die Diskretisierung auf einem körperangepassten Rechengitter. Dies erfordert eine Transformation des Gleichungssystems in die generalisierten Koordinaten  $\xi(r, z)$  und  $\eta(r, z)$ . Das körperangepasste Rechengitter wird durch den Gittergenerator TOMCAT erzeugt [130, 131]. Dieser erstellt unter Vorgabe der Randpunkte das Rechengitter durch Lösung des Gleichungssystems

$$\begin{aligned}\xi_{rr} + \xi_{zz} &= 0 \\ \eta_{rr} + \eta_{zz} &= 0 \quad .\end{aligned}\tag{3.35}$$

Dabei besteht zusätzlich die Möglichkeit, das Rechengitter in bestimmten Zonen zu verfeinern, um auftretende steile Gradienten oder starke Krümmungen in den Profilen hinreichend abzubilden. Die Verfeinerung wird durch die Veränderung der rechten Seite des Gleichungssystems (3.35) erreicht.

$$\begin{aligned}\xi_{rr} + \xi_{zz} &= P(\xi, \eta) \\ \eta_{rr} + \eta_{zz} &= Q(\xi, \eta) \quad .\end{aligned}\tag{3.36}$$

Das Rechengitter lässt sich nun an den Gitterlinien  $\xi_i$  und  $\eta_i$  und an den Punkten  $(\xi_j, \eta_j)$  durch eine entsprechende Wahl von  $P(\xi, \eta)$  und  $Q(\xi, \eta)$  verfeinern.

$$\begin{aligned}P(\xi, \eta) &= - \sum_{i=1}^N a_i \cdot \operatorname{sgn}(\xi - \xi_i) \cdot \exp(-c_i |\xi - \xi_i|) \\ &\quad - \sum_{j=1}^M b_j \cdot \operatorname{sgn}(\xi - \xi_j) \cdot \exp\left(-d_j \sqrt{(\xi - \xi_j)^2 + (\eta - \eta_j)^2}\right)\end{aligned}\tag{3.37}$$

$$\begin{aligned}Q(\xi, \eta) &= - \sum_{i=1}^N a_i \cdot \operatorname{sgn}(\eta - \eta_i) \cdot \exp(-c_i |\eta - \eta_i|) \\ &\quad - \sum_{j=1}^M b_j \cdot \operatorname{sgn}(\eta - \eta_j) \cdot \exp\left(-d_j \sqrt{(\xi - \xi_j)^2 + (\eta - \eta_j)^2}\right)\end{aligned}\tag{3.38}$$

Dabei sind  $a_i, b_j$  Amplituden und  $c_i, d_j$  Abklingfaktoren. Ausführliche Beschreibungen des Verfahrens der Gittergenerierung finden sich in [6, 130, 131].

Die Diskretisierung der Ortskoordinaten  $r$ ,  $z$  bzw.  $\xi$ ,  $\eta$  erfolgt mittels finiter Differenzen. Für die konvektiven Terme findet das "flux vector splitting upwind scheme" von Steger und Warming [104, 125] Anwendung. Die diffusiven und viskosen Terme werden durch zentrale Differenzen mit einer Genauigkeit zweiter Ordnung diskretisiert [103].

Somit erhält man, analog zur eindimensionalen Simulation, ein System von gewöhnlichen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen. Zur Lösung wird auch hier das linear implizite Extrapolationsverfahren LIMEX [28] benutzt. Dabei sind für den Fall der zweidimensionalen Verbrennungsprozesse effiziente numerische Methoden implementiert, welche die Block-nonadiagonale Struktur des Gleichungssystems ausnutzen [104]. Diese sorgen für eine Minimierung des benötigten Rechenzeitaufwands und Speicherplatzbedarfs.

Zur Simulation der zweidimensionalen Verbrennungsprozesse wurde im Rahmen dieser Arbeit das Simulationstool FLAME2D entwickelt, das auf dem bereits bestehenden Simulationstool DROP2D [6] basiert.

### 3.3 Innere Zirkulation - "Internal Mixing"

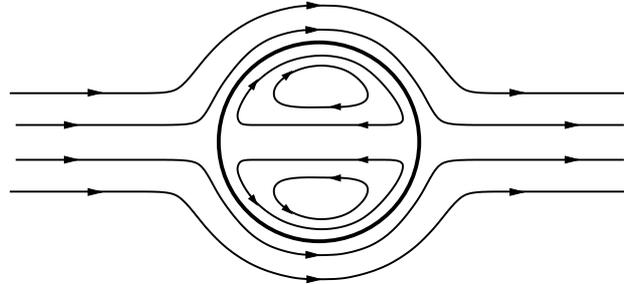
Die in Abschnitt 3.1 erwähnte sphärische Symmetrie im Experiment zu gewährleisten, ist mit großem Aufwand verbunden. Da das Vorhandensein einer Gravitationskraft einen Symmetriebruch bedeutet, werden Experimente unter Mikrogravitation durchgeführt. Mikrogravitation bedeutet, dass die im untersuchten System vorhandene Gravitationskraft einem Bruchteil ( $\approx 10^{-2}g$ ) der Schwerkraft an der Erdoberfläche entspricht. Diese Bedingungen können in Falltürmen [21, 38, 48, 87, 129], bei Parabelflügen [17, 137] oder bei Raumfahrtmissionen [29, 84] gewährleistet werden.

Trotz oder gerade wegen dieser äußeren Bedingungen können Störungen auftreten, die Auswirkungen auf das untersuchte System haben. Aufgrund der erwähnten Störungen kann eine Zirkulation bzw. Konvektion innerhalb des Flüssigkeitstropfens auftreten. Solche Störungen umfassen [72]:

1. Bewegung des Tropfens relativ zur umgebenden Gasphase
2. konvektive Ströme, die durch die Tropfengeneration oder -platzierung entstehen
3. Marangoni-Konvektion aufgrund von Inhomogenitäten der Temperatur an der Tropfenoberfläche
4. Marangoni-Konvektion aufgrund von Inhomogenitäten der Gemischzusammensetzung an der Tropfenoberfläche.

Der Einfluss einer Relativbewegung von Tropfen und Gasphase ist äquivalent zum Einfluss einer äußeren Gasströmung, die den Tropfen umgibt. Die Scherspannungen, die durch diese

äußere Gasströmung auf der Tropfenoberfläche hervorgerufen werden, induzieren eine zirkulierende Strömung im Innern des Tropfens. Ist die Reynoldszahl der äußeren Gasströmung nicht zu hoch, bildet sich im Tropfeninnern ein sogenannter “Hill’s vortex“ aus [60, 95, 113]. Abbildung 3.4 zeigt schematisch die Strömungskonfiguration für diesen Fall.



**Abbildung 3.4:** Zirkulierende Strömung im Innern des Tropfens (“Hill’s vortex“)

Die Marangoni-Konvektion wird durch eine Variation der Oberflächenspannung entlang der Tropfenoberfläche verursacht. Die Variation der Oberflächenspannung wird dabei durch Inhomogenitäten der Temperatur (thermischer Marangoni-Effekt) oder durch Inhomogenitäten der Gemischzusammensetzung an der Oberfläche hervorgerufen [31, 32, 72, 86, 95]. Da der Gradient der Oberflächenspannung und die Scherspannungen an der Oberfläche im Gleichgewicht stehen, wird eine Strömung im Innern des Tropfens induziert [31, 86, 95]. Erwärmt sich der Tropfen z. B. aufgrund einer äußeren Gasströmung (Abbildung 3.4) auf der linken Seite stärker als auf der rechten Seite, resultiert daraus aufgrund des thermischen Marangoni-Effekts ein Gradient der Oberflächenspannung entlang der Tropfenoberfläche, wobei an Stellen höherer Temperatur niedrigere Oberflächenspannungen auftreten. Dieser Gradient führt zu Scherspannungen an der Oberfläche, woraus eine Strömung von den heißen zu den kalten Regionen im Innern des Tropfens resultiert [31, 32, 86, 95, 96]. Bei höheren Reynoldszahlen der äußeren Gasströmung sowie bei der Überlagerung der Marangoni-Konvektion und Strömungen, die durch die äußere Gasströmung direkt induziert werden, entstehen komplexere Strömungsstrukturen im Innern des Tropfens [60, 95, 96].

Durch das Auftreten der beschriebenen Störungen ist die sphärische Symmetrie nicht länger gewährleistet. Untersuchungen [72] zeigen jedoch, dass dieser Symmetriebruch nur die flüssige Phase betrifft und dass in der Gasphase weiter von sphärischer Symmetrie, und somit einem eindimensionalen Verbrennungsprozess, ausgegangen werden kann. Um bei der eindimensionalen Modellierung dennoch die Auswirkungen der inneren Zirkulation im Tropfen zu berücksichtigen, werden die Transportkoeffizienten  $\lambda$  und  $D$  mit einem Faktor  $\chi$  ( $\chi \geq 1$ ) multipliziert [1, 72, 114]. Dies führt zu “effektiven“ Werten der Wärmeleitfähigkeit und der Diffusionskoeffizienten. Ein quantitatives Maß für den Einfluss der inneren Zirkulation auf die Transportvorgänge im Tropfen stellt die Pecletzahl des Tropfens dar, die das Verhältnis von konvektivem Wärmetransport (bzw. Massentransport) zu Wärmeleitung (bzw. Diffusion) angibt. Hierbei wird zwischen der thermischen Pecletzahl

$$\text{Pe}_{th}^l = r \cdot \frac{|dr/dt|}{\alpha^l} = \frac{K}{8 \cdot \alpha^l} \quad (3.39)$$

und der massenbezogenen Pecletzahl

$$\text{Pe}_m^l = r \cdot \frac{|dr/dt|}{D^l} = \frac{K}{8 \cdot D^l} \quad (3.40)$$

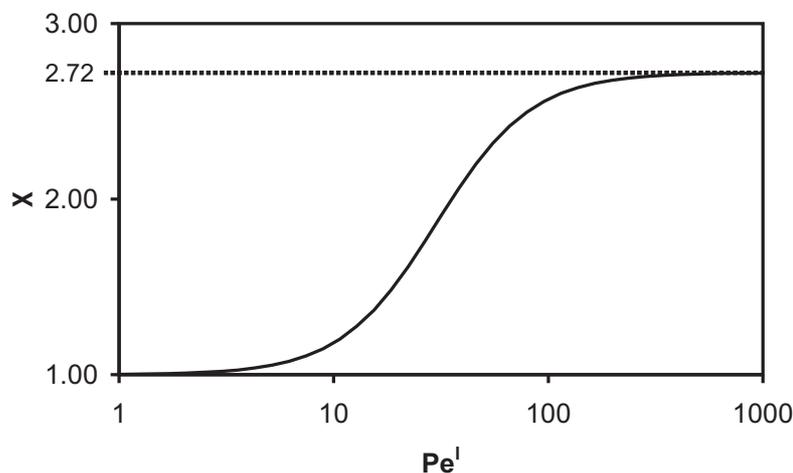
unterschieden.  $r$  bezeichnet den Radius des Tropfens,  $t$  bezeichnet die Zeit, und  $K$  stellt die Brennkonzstante des Tropfens, i. e. die Proportionalitätskonstante des  $d^2$ -Gesetzes (siehe Abschnitt 4.1, [60, 114, 138]), dar. Aufgrund der beschriebenen Aussagekraft der Pecletzahl ist der Faktor zur Berechnung der effektiven Transportkoeffizienten eine Funktion der entsprechenden Pecletzahl. Es gilt somit für die effektiven Transportkoeffizienten

$$\lambda_{\text{eff}}^l = \chi(\text{Pe}_{th}^l) \cdot \lambda^l \quad (3.41)$$

$$D_{\text{eff}}^l = \chi(\text{Pe}_m^l) \cdot D^l \quad (3.42)$$

Durch Approximation experimenteller Daten erhält man für den funktionalen Zusammenhang  $\chi(\text{Pe}^l)$  [1]

$$\chi(\text{Pe}^l) = 1.86 + 0.86 \tanh [2.245 \cdot \log_{10}(\text{Pe}^l/30)] \quad (3.43)$$



**Abbildung 3.5:** Abhängigkeit des Faktors zur Bestimmung der effektiven Transportkoeffizienten von der Pecletzahl

Der Wert von  $\chi$  variiert somit zwischen 1 und 2.72 (Abbildung 3.5). Dieser Ansatz wird auch "effective conductivity model" genannt [1, 114].



# Kapitel 4

## Modellierung der Zündung und Verbrennung von Einzeltropfen

Soll eine Verbesserung des Verständnisses der physikalischen und chemischen Phänomene erzielt werden, ist es ratsam, ein möglichst einfaches System zu untersuchen, in dem die zu untersuchenden Phänomene auftreten. Aus diesem Grund werden die physikalischen und chemischen Prozesse und deren Wechselwirkung während des Zündprozesses eines Brennstofftropfens sowie der Einfluss verschiedener Umgebungsparameter auf den Zündprozess anhand eines Einzeltropfens umgeben von einer Gasatmosphäre untersucht. Dabei wird angenommen, dass sowohl Tropfen als auch Gasatmosphäre ruhen und keine äußere Kraft (wie z. B. Gravitation) auf das zu untersuchende System einwirkt. Zudem handelt es sich um einen Tropfen, der aus einem reinen Brennstoff besteht. Die Erweiterung dieses Systems hin zu realitätsnäheren Bedingungen wird in Kapitel 5 und 6 vorgenommen.

Aufgrund des angestrebten Vergleichs der hier erzielten Ergebnisse mit experimentellen Ergebnissen [16, 57] im Rahmen des Teilprojekts B5 des SFB 606 sind die Simulationen für Bedingungen durchgeführt worden, die mit dem experimentellen Aufbau vergleichbar sind. Daher liegt eine Vielzahl von Simulationsergebnissen bei Umgebungsdrücken von  $p = 7$  bar und  $p = 8$  bar vor. Es sind jedoch auch Simulationen bei anderen Umgebungsdrücken realisiert worden. Des Weiteren soll durch die Resultate aus Abschnitt 4.7 eine Extrapolation der Ergebnisse bei einem bestimmten Umgebungsdruck auf andere Umgebungsdrücke ermöglicht werden.

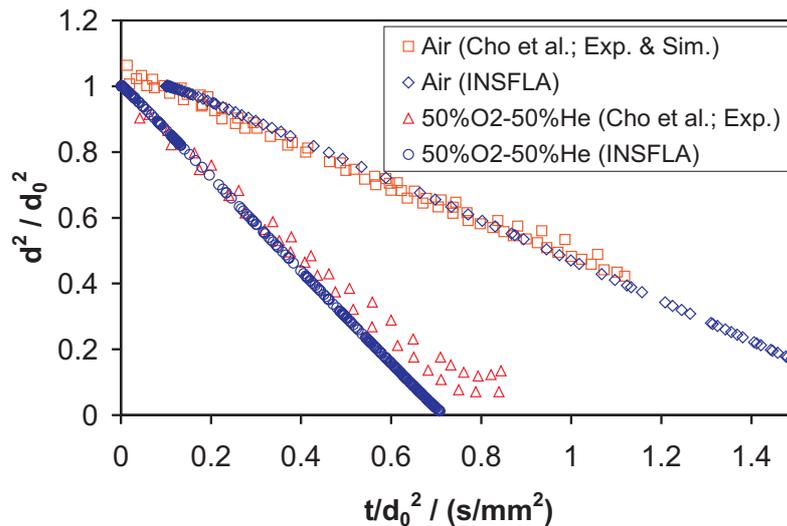
Ferner ist die Mehrzahl der Simulationen für einen Anfangsradius von  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$  durchgeführt worden. Dies ermöglicht einen Vergleich von Zündverzugszeiten über einen weiten Bereich von Umgebungsparametern, insbesondere Umgebungstemperaturen, da gewährleistet ist, dass der Tropfen nicht vollständig verdunstet ist, bevor es zu einer Zündung kommen kann. Hier sollen die Resultate aus Abschnitt 4.4 eine Extrapolation auf andere Tropfenradien ermöglichen. Die Zündverzugszeit ist dabei definiert als die Differenz von Zündzeitpunkt und Beginn der Simulation. Der Zündzeitpunkt wird durch den Wendepunkt

im Anstieg des zeitlichen Profils der maximalen OH-Konzentration bzw. der maximalen Temperatur im Rechengbiet festgelegt [27, 98, 122].

## 4.1 Vergleiche mit anderen Arbeiten

Um die Zuverlässigkeit des erweiterten Simulationstools INSFLA zu überprüfen, wurden mehrere Fallbeispiele aus der Literatur simuliert und die Resultate mit den Ergebnissen anderer Arbeiten verglichen. Zunächst werden die Resultate von Simulationen der Verbrennung eines Methanoltropfens präsentiert, gefolgt von Simulationen der Zündung und Verbrennung von Heptantropfen.

In Abbildung 4.1 ist die zeitliche Entwicklung des Tropfendurchmessers eines Methanoltropfens unter zwei verschiedenen atmosphärischen Bedingungen dargestellt. Im einen Fall besteht die Gasatmosphäre aus Luft, im anderen Fall je zur Hälfte aus Sauerstoff und Helium.



**Abbildung 4.1:** Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines Methanoltropfens in verschiedenen Gasatmosphären ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 500 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 300 \text{ K}$ ,  $T_D(0) = 300 \text{ K}$ )

Es sind jeweils die experimentellen und numerischen Ergebnisse von Cho et al. [21] den Resultaten der Simulationen mit INSFLA gegenübergestellt. Da die Umgebungstemperatur  $300 \text{ K}$  beträgt musste der Brennstofftropfen in diesem Fall fremdgezündet werden. Der Zündvorgang ist nach ca.  $0.1 \text{ s}$  vollständig abgeschlossen. Wie man in Abbildung 4.1 erkennen kann, wird die zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers  $d$  nach der Zündung in allen Fällen durch das bekannte  $d^2$ -Gesetz [60, 114, 138]

$$d^2(t) = d_0^2 - K \cdot t \quad (4.1)$$

beschrieben. Aufgrund der Existenz einer transienten Anfangsphase, in der sich der Tropfen aufheizt und zündet, kann das zeitliche Verhalten des Tropfendurchmessers nicht von Beginn an mit dem  $d^2$ -Gesetz beschrieben werden, sondern erst nach Beginn des Abbrands des Tropfens, der ein quasistationäres Verhalten darstellt. Aus diesem Grund wird in diesem Kapitel die Brennkonzstante  $K$  des Abbrands des Tropfens analysiert.<sup>2</sup> Die Zusammensetzung des umgebenden Gases beeinflusst dabei merklich den Wert für die Brennkonzstante  $K$ . Tabelle 4.1 zeigt die Brennkonzstanten sowie die Tropfendurchmesser zu Beginn  $d_D(0)$  der Simulationen mit INSFLA verglichen mit den Ergebnissen von Cho et al..

	Cho et al. [21]		
	INSFLA	Experiment	Simulation
Gasatmosphäre: Luft			
$d_D(0)/\text{mm}$	1.0	0.8-1.1	0.2-1.2
$K/(\text{mm}^2/\text{s})$	0.61	$0.56 \pm 0.05$	0.64
Gasatmosphäre: 50% O <sub>2</sub> & 50% He			
$d_D(0)/\text{mm}$	1.0	0.8-1.2	0.5-1.2
$K/(\text{mm}^2/\text{s})$	1.44	$1.3 \pm 0.1$	1.45

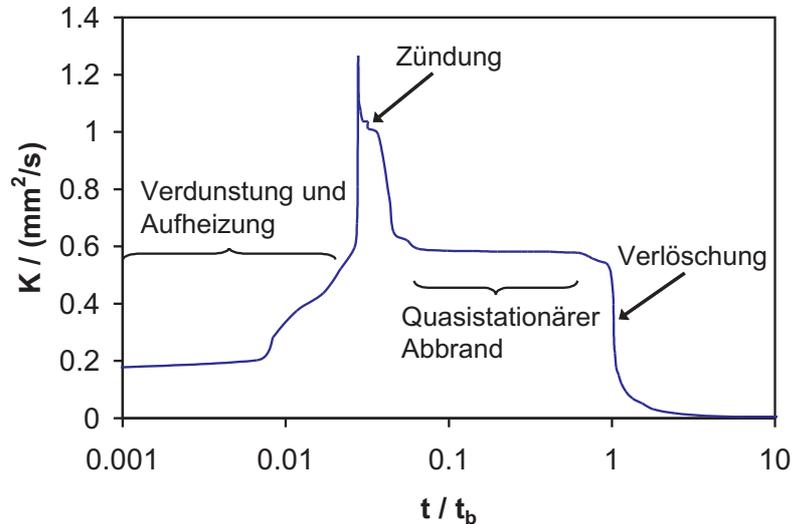
**Tabelle 4.1:** Vergleich der Brennkonzstanten  $K$  des Verbrennungsprozesses eines Methanoltropfens

Wie man sowohl in Abbildung 4.1 als auch in Tabelle 4.1 erkennen kann, stimmen die Brennkonzstanten  $K$  sehr gut mit den experimentellen und numerischen Ergebnissen von Cho et al. überein. Die Übereinstimmung wird unterstrichen durch weitere Werte für die Brennkonzstante  $K$  aus der Literatur, wie  $0.75 \text{ mm}^2/\text{s}$  von Chauveau et al. [17],  $0.7 \text{ mm}^2/\text{s}$  von Vieille et al. [137] und  $0.6 \text{ mm}^2/\text{s}$  von Marchese et al. [73] für den Abbrand eines Methanoltropfens in Luft. Die Brennkonzstante  $K$  zeigt sich dabei abhängig von den jeweiligen Umgebungsbedingungen, wie z. B. einer anderen Umgebungstemperatur [120] oder einem veränderten Sauerstoffgehalt in der Atmosphäre [73]. Die Ergebnisse für die Gasatmosphäre bestehend aus Sauerstoff und Helium zeigen zudem, dass der Einfluss der Stoffeigenschaften unterschiedlicher Stoffe in der Gasphase zuverlässig durch die Simulation wiedergegeben wird. Aufgrund der Schwierigkeit einer exakten Modellierung des Zündvorgangs im Experiment (mit Hilfe zweier Zündkerzen) wurde sowohl im Fall der Simulationen von Cho et al. [21] als auch im Fall der hier durchgeführten Simulationen ein zeitlicher Offset für die Resultate der numerischen Simulation bestimmt, indem ein Zeitpunkt nach der Zündung bestimmt wurde, an dem der Tropfendurchmesser der numerischen Simulation dem experimentell bestimmten Wert entspricht.

Die numerische Simulation erlaubt zudem einen detaillierten Einblick in den Verbrennungs-

<sup>2</sup>Da das  $d^2$ -Gesetz auch im Fall der reinen Verdunstung eines Tropfens Gültigkeit hat, lediglich die Proportionalitätskonstante  $K$  einen anderen Wert annimmt, wird  $K$  für den Fall, dass keine Verbrennung stattfindet, auch als Verdunstungskonzstante bezeichnet.

prozess. So liefern zeitaufgelöste instationäre Simulationen einen Einblick in die zeitliche Abfolge der verschiedenen Phasen des Verbrennungsprozesses während der Zündung und Verbrennung eines Brennstofftropfens. In Abbildung 4.2 werden diese Phasen durch den zeitlichen Verlauf der Verdunstungskonstante  $K$  veranschaulicht.



**Abbildung 4.2:** Zeitliche Variation der Verdunstungskonstante  $K$  ( $p = 1.01$  bar,  $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 300$  K,  $T_D(0) = 300$  K)

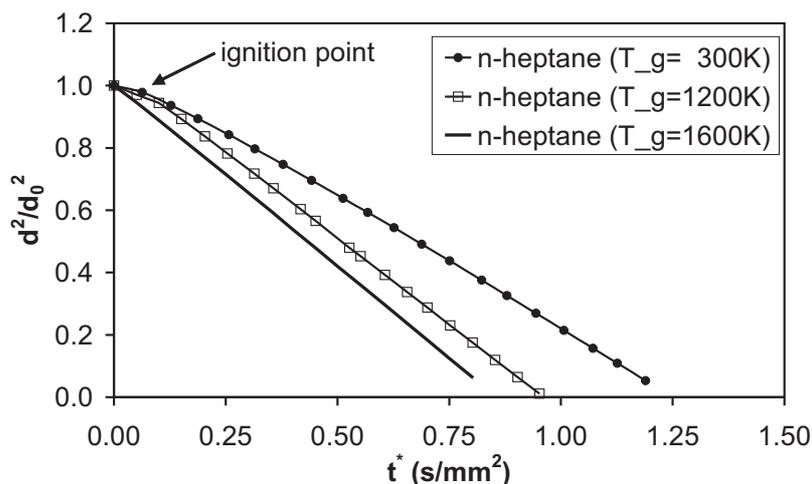
Zu Beginn des Prozesses weist die Verdunstungskonstante einen konstanten Wert auf, der durch die Anfangstemperatur des Tropfens und den daraus resultierenden Dampfdruck bestimmt wird. In der Aufheizphase ( $0.01 \lesssim t/t_b \lesssim 0.05$ ) steigt die Oberflächentemperatur von 300 K auf 320 K an. Die steigende Oberflächentemperatur führt zu einer Erhöhung der Verdunstungskonstante. Die Zündung des Tropfens lässt sich anhand des weiteren abrupten Anstiegs der Verdunstungskonstante erkennen. Der sich anschließende quasistationäre Abbrand des Tropfens ist durch die Konstanz der Brennrate gekennzeichnet. Während dieses Abbrands sinkt der Durchmesser sowohl des Tropfens als auch der Flamme. Wird der Durchmesser der Flamme zu gering, so dass irgendwann die Wärmeableitung bzw. Massendiffusion aufgrund von Transportprozessen die Wärmefreisetzungsrate übersteigt, verlischt die Flamme [21]. Dieser Vorgang lässt sich am rapiden Abfall der Verdunstungskonstante erkennen. Dasselbe qualitative Verhalten wird auch von Cho et al. [21] beschrieben. Jedoch sind quantitative Unterschiede im zeitlichen Verlauf der Verdunstungskonstante zwischen den hier und den von Cho et al. erzielten Resultaten erkennbar, die auf die unterschiedliche Modellierung des Zündprozesses zurückgeführt werden.

Um die Zuverlässigkeit der Resultate der Simulationen hinsichtlich der Stoffeigenschaften der flüssigen Phase zu überprüfen, wurden auch Simulationen der Verbrennung von Tropfen bestehend aus anderen Brennstoffen durchgeführt und die Resultate mit der Literatur

verglichen. Es wurde der Abbrand eines Ethanoltröpfens mit einem Durchmesser von 1 mm bei Normaldruck und einer Umgebungstemperatur von 300 K simuliert. Die resultierende Brennkonstante von  $0.625 \text{ mm}^2/\text{s}$  entspricht den von Kazakov et al. [56] angegebenen Werten im Bereich von  $0.54 \text{ mm}^2/\text{s}$  bis  $0.64 \text{ mm}^2/\text{s}$ .

Des weiteren wurden Resultate der Simulationen von Heptantropfen mit diversen Literaturquellen verglichen. Zunächst wurde die Simulation eines verdunstenden Tropfens bestehend aus n-Heptan in einer inerten Stickstoffatmosphäre durchgeführt. Die umgebende Gasphase hatte dabei eine Temperatur von 468 K und einen Druck von 5 bar. Der Heptantropfen hatte zu Beginn der Simulation Raumtemperatur und einen Durchmesser von 0.7 mm. Die ermittelte Verdunstungskonstante von  $0.12 \text{ mm}^2/\text{s}$  stimmt sehr gut mit dem von Nomura et al. [87] experimentell bestimmten Wert von  $0.11 \text{ mm}^2/\text{s}$  überein.

Des weiteren wurde auch die Brennkonstante  $K$  eines in Luft brennenden Heptantropfens validiert. Abbildung 4.3 zeigt die zeitliche Entwicklung des Tropfendurchmessers eines Heptantropfens bei  $p = 1 \text{ bar}$  Umgebungsdruck für drei verschiedene Temperaturen der umgebenden Gasphase.



**Abbildung 4.3:** Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines Heptantropfens ( $p = 1.00 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ )

Wie im Fall des Methanols folgt auch hier der Tropfendurchmesser nach einer transienten Anfangsphase, in der der Tropfen zündet, dem  $d^2$ -Gesetz. Es ist zu beachten, dass im Fall der niedrigsten Umgebungstemperatur (300 K) der Tropfen durch eine externe Energiezufuhr fremdgezündet werden muss, wohingegen für die beiden anderen Temperaturen eine Selbstzündung des Tropfens einsetzt. In Tabelle 4.2 sind Werte aus der Literatur für die Brennkonstante den hier ermittelten Werten gegenübergestellt.

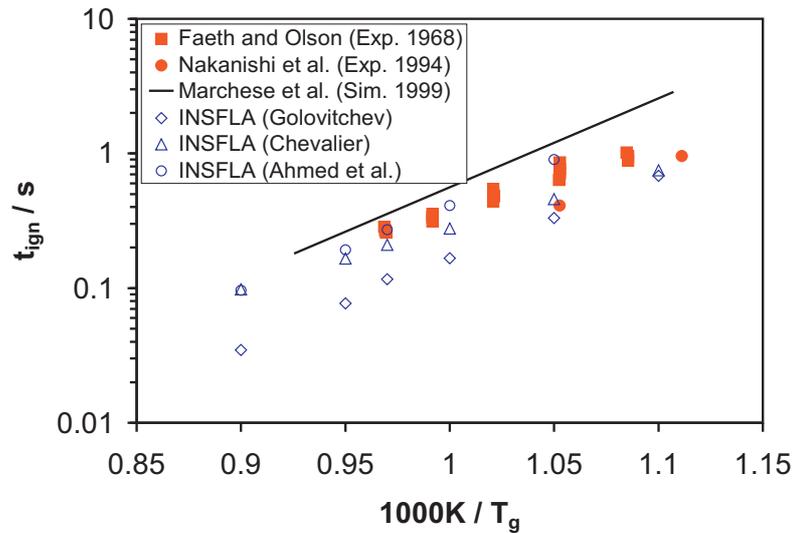
Alle aufgeführten Werte stimmen bis auf  $\pm 10\%$  überein. Ein genauerer Vergleich ist aufgrund leicht unterschiedlicher experimenteller Bedingungen, die z. T. in den Randbedingungen der numerischen Simulation nicht vollständig abgebildet werden können, nicht möglich.

	$d_D(0)/\text{mm}$	$K/(\text{mm}^2/\text{s})$
INSFLA	0.2	0.83
	0.4	0.82
	1.0	0.81
Vieille et al. (Experiment [137])	1.5	0.85
Jackson und Avedisian (Experiment [53])	0.44-0.49	0.758
Hara und Kumagai (Experiment [48])	1.0	0.75
Cho und Dryer (Simulation [22])	1.0	0.8

**Tabelle 4.2:** Vergleich der Brennkosten  $K$  des Verbrennungsprozesses eines Heptantropfens

Da in dieser Arbeit vor allem der Zündprozess eines Kraftstofftropfens untersucht werden soll, werden zunächst auch Zündverzugszeiten eines Heptantropfens bestimmt, die mit den entsprechenden Werten aus der Literatur verglichen werden können. Diese Validierung wird anhand von Ergebnissen der bahnbrechenden Arbeit von Faeth und Olson [38] durchgeführt, die auch schon Marchese et al. [74] zur Prüfung ihrer Simulationsergebnisse diente. Des Weiteren werden experimentell bestimmte Zündverzugszeiten von Nakanishi et al. [83] zur Validierung herangezogen. Abbildung 4.4 zeigt die ermittelten Zündverzugszeiten eines selbstzündenden Heptantropfens bei Gastemperaturen um die 1000 K. Sowohl die experimentellen Ergebnisse von Faeth und Olson [38] und von Nakanishi et al. [83] als auch die Simulationsergebnisse von Marchese et al. [74] sind dargestellt.

Es wurden mit INSFLA Simulationen mit drei verschiedenen Reaktionsmechanismen durchgeführt. Wie man erkennen kann, stimmen die mit den Mechanismen von Chevalier [19] bzw. Ahmed et al. [5] erzielten Ergebnisse sehr gut mit den experimentellen Werten von Faeth und Olson überein. Die mit Hilfe des Reaktionsmechanismus von Golovitchev [43] durchgeführten Simulationen liefern Zündverzugszeiten, deren Betrag im Vergleich mit den Ergebnissen von Faeth und Olson um ca. den Faktor 2.5 zu gering ist. Das qualitative Verhalten der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur wird jedoch richtig wiedergegeben. Zudem wird mit den Zündverzugszeiten von Nakanishi et al. und den Resultaten der Simulationen mit den Mechanismen von Chevalier und Golovitchev eine sehr gute Übereinstimmung erzielt. Da dieser Reaktionsmechanismus hinsichtlich der Zündverzugszeiten von homogenen Brennstoff/Luft-Gemischen unter adiabatischen Bedingungen sehr gut validiert ist [43], wird die Ungenauigkeit in den hier erhaltenen Zündverzugszeiten auf Unzulänglichkeiten in der Darstellung der Wärmefreisetzungsraten zurückgeführt. Diese sind für den Zündprozess von Brennstofftropfen von erheblicher Bedeutung, wohingegen



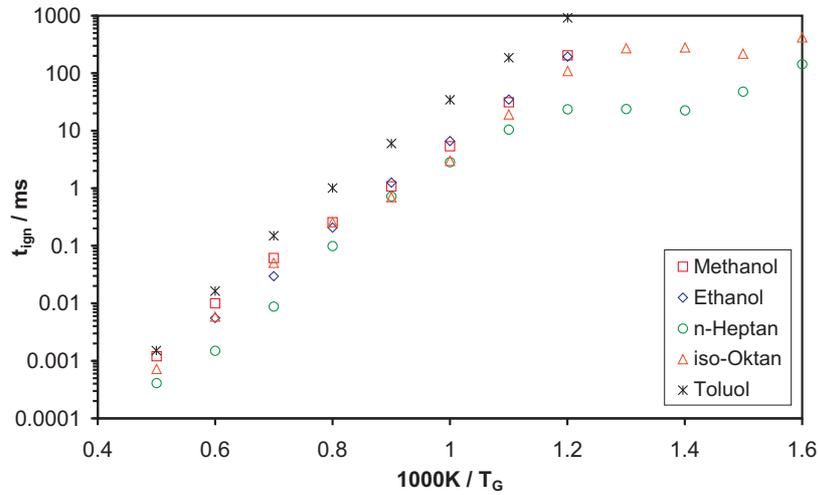
**Abbildung 4.4:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für einen Heptan-tropfen ( $p = 1.01$  bar,  $r_D(0) = 660 \mu\text{m}$ )

eine Reproduktion des Zündverzugs unter adiabatischen Bedingungen diese nicht immer erfordert [128]. Es ist jedoch zu bemerken, dass die Verwendung der Reaktionsmechanismen von Ahmed et al. und Chevalier einen erheblich größeren Rechenaufwand erfordert, da sowohl die Anzahl der chemischen Spezies (Ahmed et al.: 94 Spezies; Chevalier: 172 Spezies) als auch die Anzahl der chemischen Reaktionen (Ahmed et al.: 614 Reaktionen; Chevalier: 1007 Reaktionen) den Umfang des Reaktionsmechanismus von Golovitchev (56 Spezies, 570 Reaktionen) übertrifft. Aus diesem Grund werden die Simulationen für Brennstofftropfen aus reinem n-Heptan vornehmlich unter Verwendung des Reaktionsmechanismus von Golovitchev durchgeführt. Vereinzelt findet auch der Reaktionsmechanismus von Ahmed et al. Verwendung.

## 4.2 Vergleich verschiedener Brennstoffe

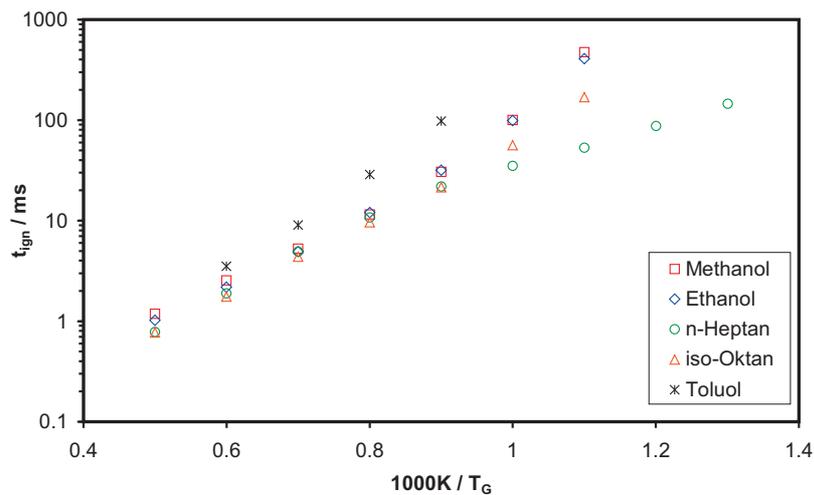
Die signifikanteste Abhängigkeit der Zündverzugszeit von äußeren Bedingungen besteht in der Abhängigkeit von der Temperatur der Gasphase, die in diesem Abschnitt untersucht werden soll. Die starke Abhängigkeit des Zündverzugs von der Gastemperatur hat ihren Ursprung zum einen in der Beschleunigung der Transportprozesse, die durch die Temperaturabhängigkeit der Transportkoeffizienten ( $D \propto T^{3/2}$ ,  $\lambda \propto \sqrt{T}$  [12, 138]) verursacht wird, und zum anderen in der Beschleunigung der chemischen Kinetik mit steigender Temperatur. Die Temperaturabhängigkeit der chemischen Kinetik lässt sich am besten in einem sogenannten Arrheniusdiagramm darstellen. Dieses Arrheniusdiagramm (Abbildung 4.5) zeigt die Zündverzugszeiten von homogenen Brennstoff/Luft-Gemischen unter adiabatischen Be-

dingungen für verschiedene Temperaturen und verschiedene Brennstoffe.



**Abbildung 4.5:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Temperatur für verschiedene Brennstoffe bei homogener Mischung ( $p = 8 \text{ bar}$ ,  $\lambda = 1$ )

Die logarithmische Skalierung der y-Achse verdeutlicht die exponentielle Temperaturabhängigkeit des Zündverzugs. Aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie n-Heptan und iso-Oktan zeigen jedoch in einem bestimmten Temperaturbereich (600 K bis 900 K) ein sogenanntes NTC-Verhalten (Negative Temperature Coefficient), das durch eine Verringerung der Zündverzugszeit bei sinkender Temperatur gekennzeichnet ist [138]. Dieses Verhalten resultiert aus dem Wechsel der Dominanz der Niedertemperaturkinetik bzw. der Hochtemperaturkinetik hinsichtlich des Zündprozesses.



**Abbildung 4.6:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für Einzel Tropfen aus verschiedenen Brennstoffen ( $p = 8 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 384 \text{ K}$ )

Abbildung 4.6 zeigt das entsprechende Arrheniusdiagramm für Einzeltropfen mit einem Radius von  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ . Es lässt sich ebenfalls eine exponentielle Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur erkennen. Aufgrund der ähnlichen physikalischen Eigenschaften der untersuchten Stoffe bleibt der Trend der Verkürzung der Zündverzugszeit von Aromaten über Alkohole hin zu Aliphaten [138], wie er in homogenen Mischungen besteht, erhalten. Darüber hinaus kann man eine generelle Verlängerung der Zündverzugszeit des Einzeltropfens im Vergleich zur homogenen Mischung unter ansonsten gleichen Bedingungen beobachten (siehe auch [122]). Diese Verlängerung des Zündverzugs lässt sich auf die Tatsache zurückführen, dass sich infolge des Verdunstungsprozesses zunächst ein Brennstoff/Luft-Gemisch bilden muss. Diese Bildung wird durch physikalische Transportprozesse, wie Diffusion, verursacht. Aufgrund der geringen Temperatur des Tropfens und der daraus folgenden Inhomogenität der Temperatur im Raum, hat das Brennstoff/Luft-Gemisch zudem nicht zwingend die Temperatur der umgebenden Gasphase. Vielmehr ist es sehr wahrscheinlich, dass die Temperatur des Gemisches deutlich niedriger ist, da sich das angesprochene Gemisch zunächst in der nahen Umgebung des Tropfens bilden wird. Dieser Sachverhalt führt zu einer erheblichen Verlängerung der Zündverzugszeit. Des Weiteren hat der Umstand, dass im Fall des Einzeltropfens nicht nur chemische sondern auch physikalische Prozesse die Zündverzugszeit bestimmen, zur Folge, dass die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur nicht mehr so drastisch wie für homogene Mischungen ausfällt. Die exponentielle Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Temperatur bleibt jedoch weiterhin erhalten. Ein NTC-Verhalten, wie im Fall der homogenen Mischung, kann für n-Heptantropfen bzw. iso-Oktantropfen nicht festgestellt werden. Jedoch lässt sich in Abbildung 4.6 im Fall des n-Heptans eine Verringerung der Steigung der Kurve für Umgebungstemperaturen  $\leq 1000 \text{ K}$  erkennen. Diese Änderung der Steigung ist eindeutig auf den Übergang von Hochtemperatur- zu Niedertemperaturkinetik zurückzuführen. Dennoch steigt die Zündverzugszeit mit sinkender Temperatur weiterhin an, da der Verdunstungsprozess aufgrund der geringer werdenden Umgebungstemperatur verzögert wird. Weiterhin verlangsamen sich die physikalischen Transportprozesse aufgrund der mit sinkender Temperatur kleiner werdenden Transportkoeffizienten. Dieses Verhalten verdeutlicht die starke Wechselwirkung zwischen physikalischen Transportprozessen und chemischer Kinetik [77, 122]. Für höhere Gastemperaturen ( $T_g > 1100 \text{ K}$ ) kann hingegen davon ausgegangen werden, dass die physikalischen Transportprozesse geschwindigkeitsbestimmend sind [122]. Eine Abflachung der Kurve lässt sich für iso-Oktan in Abbildung 4.6 nicht feststellen. Dafür ist zum einen der Umstand verantwortlich, dass auch im homogenen Fall der NTC-Bereich des iso-Oktans tiefere Temperaturen umfasst als der NTC-Bereich des n-Heptans. Zum anderen trägt die Zündverzugszeit des iso-Oktans im NTC-Bereich ungefähr das Zehnfache der Zündverzugszeit des n-Heptans. Dies führt dazu, dass ein Oktantropfen der untersuchten Größe bei den angegebenen Bedingungen vollständig verdunstet ist und der Brennstoffdampf sich aufgrund von Diffusion so weit verdünnt, dass bei den entsprechenden

Umgebungstemperaturen keine Zündung stattfindet.

Die erhaltene Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Umgebungstemperatur eröffnet die Möglichkeit der Beschreibung dieser Abhängigkeit durch ein Proportionalitätsgesetz. Aufgrund des linearen Verlaufs der Kurven in Abbildung 4.6 lässt sich die Abhängigkeit der Zündverzugszeit  $t_{ign}$  von der Gastemperatur  $T_g$  in erster Näherung beschreiben durch

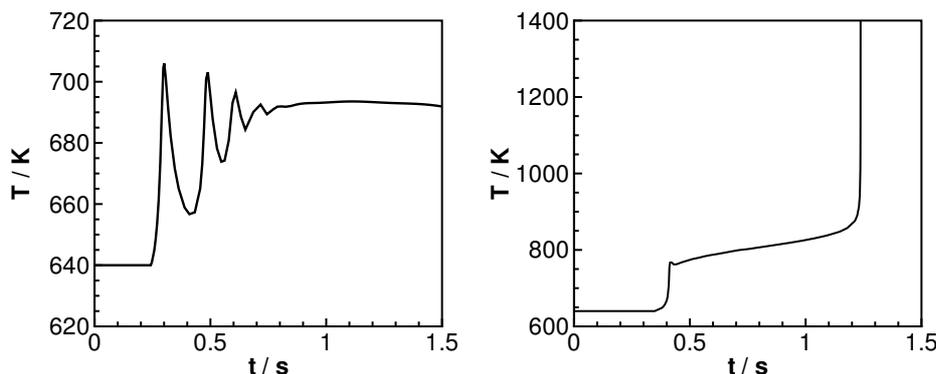
$$t_{ign}(T_g) \propto \exp\left(\frac{a}{T_g}\right), \quad (4.2)$$

wobei  $a$  eine stoffspezifische Konstante darstellt, welche die Steigung der Kurve im Diagramm beschreibt. Für Methanol wird ein Wert von  $a = 9210$  K erhalten. Aufgrund des in diesem Abschnitt beschriebenen Wechsels von Hochtemperaturkinetik zu Niedertemperaturkinetik ist es nicht möglich für n-Heptan eine einzige Konstante anzugeben. Vielmehr kann die Temperaturabhängigkeit der Zündverzugszeit für n-Heptan durch jeweils eine Konstante für den Hochtemperaturbereich  $a_{HT}$  ( $T_g > 1100$  K) und den Niedertemperaturbereich  $a_{NT}$  ( $T_g < 1100$  K) beschrieben werden. Die ermittelten Werte für die beiden Werte betragen  $a_{HT} = 8435$  K und  $a_{NT} = 4652$  K.

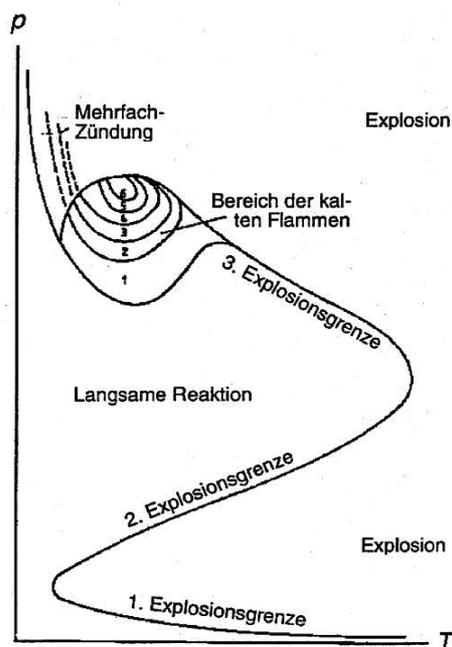
### 4.3 Untersuchung verschiedener Zündmodi

Weist ein Brennstoff, wie n-Heptan, eine Hochtemperaturkinetik und eine Niedertemperaturkinetik auf, lässt sich bei der Zündung von Einzeltropfen ein komplexes Selbstzündungsverhalten [106, 124, 128, 138] beobachten. Abhängig von der Gastemperatur und dem äußeren Druck treten bei n-Heptan dabei vier verschiedene Zündmodi der Einzeltropfen auf. Die einstufige Zündung (Single stage) und das Ausbleiben einer Zündung (No ignition) können bei jedem Brennstoff beobachtet werden. Bei n-Heptan können zudem auch kalte Flammen (Cool flames) und zweistufige Zündungen (Two stage) gefunden werden [124]. Abbildung 4.7 zeigt die für diese beiden Zündmodi charakteristischen Temperaturverläufe. Die linke Seite von Abbildung 4.7 zeigt den typischen oszillatorischen Temperaturverlauf einer kalten Flamme. Zu Beginn der Zündung steigt die Temperatur an, fällt jedoch anschließend wieder ab. Die Zündung durch chemische Prozesse wird hier wieder abgebrochen, da sich aufgrund der Temperaturerhöhung die chemischen Gleichgewichte verschieben. Die dabei freigesetzte Wärme wird aufgrund der Wärmeleitung an die Umgebung abgegeben. Somit kommt es nicht, wie unter adiabatischen Bedingungen, zur zweistufigen Zündung [44]. Die zeitlich oszillierende Temperatur pendelt sich bei einem Wert ("cool flame temperature") ein, der weit unterhalb typischer Flammentemperaturen ( $\approx 2000$  K) liegt. Die Verbrennung findet somit bei niedrigen Temperaturen statt ( $\rightarrow$  kalte Flamme) [45, 138]. Kalte Flammen treten nur in einem bestimmten Temperatur- und Druckbereich auf, wie Abbildung 4.8 zeigt.

Die rechte Seite von Abbildung 4.7 zeigt den Temperaturverlauf einer zweistufigen Zündung



**Abbildung 4.7:** Zeitliche Evolution der maximalen Gastemperatur bei einer kalten Flamme (links,  $p = 1 \text{ bar}$ ) und einer zweistufigen Zündung (rechts,  $p = 5 \text{ bar}$ ) (n-Heptan,  $T_g(0) = 640 \text{ K}$ ,  $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )

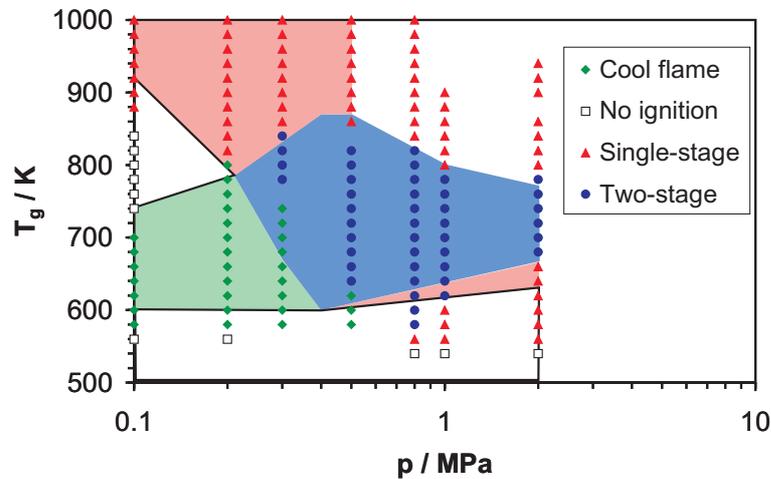


**Abbildung 4.8:** Schematisches  $p$ - $T$ -Explosionsdiagramm für Kohlenwasserstoffe [138]

(Mehrfach-Zündung), die man beim Übergang zu höheren Drücken erhält. Dabei reagiert das Brennstoff/Luft-Gemisch zunächst unter geringer Temperaturerhöhung. Wieder wird die Zündung aufgrund sich mit der Temperatur verschiebender Gleichgewichte abgebrochen. Nun findet jedoch nach einer Induktionszeit die zweite Zündung statt, bei der die entsprechende Flammentemperatur erreicht wird.

Alle oben erwähnten Zündmodi lassen sich bei der Zündung eines n-Heptantropfens beobachten. Abbildung 4.9 verdeutlicht, dass das Auftreten eines bestimmten Zündmodus von

Umgebungstemperatur und -druck abhängt.



**Abbildung 4.9:** Verschiedene Zündmodi von Heptantropfen bei unterschiedlichen Drücken und Temperaturen (Punkte: Simulation (INSFLA), Flächen: Experiment (Tanabe et al. [128]);  $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )

Die in Abbildung 4.9 eingezeichneten Punkte repräsentieren Resultate, die mit dem Simulationstool INSFLA erzielt worden sind. Die Flächen in Abbildung 4.9 stellen die experimentell ermittelten Zündmodi von Tanabe et al. [128] dar. Simulation und Experiment weisen eine gute Übereinstimmung der verschiedenen Zündmodi auf. Für geringe Umgebungstemperaturen und -drücke treten kalte Flammen auf. Aufgrund der durch Wärmeleitung an die Umgebung abgegebenen Wärme kommt es nicht zur Hochtemperaturzündung. Bei steigendem Druck beschleunigt sich die Hochtemperaturkinetik, so dass die zweite Stufe der Zündung einsetzt, bevor die Wärme an die Umgebung abgegeben wird. Es kommt zur zwei-stufigen Zündung des Brennstoffs. Bei hohen Drücken und geringen Temperaturen ist die zweite Zündverzugszeit im Vergleich zur ersten Zündverzugszeit verschwindend gering, so dass die Hochtemperaturzündung instantan nach der Zündung der kalten Flamme erfolgt. Es lässt sich somit eine einstufige Zündung beobachten. Bei hohen Umgebungstemperaturen hingegen bleibt eine Zündung durch die Niedertemperaturkinetik aufgrund der sich mit der Temperatur verschiebender Gleichgewichte komplett aus. Dies führt dazu, dass bei Umgebungstemperaturen zwischen 720 K und 900 K und Drücken kleiner als 2 bar keine Zündung des Tropfens stattfindet. Bei höheren Temperaturen bzw. höheren Drücken kommt es zur durch die Hochtemperaturkinetik ausgelösten einstufigen Zündung. Die Resultate von Experiment und Simulation in Abbildung 4.9 lassen durchaus Abweichungen von bis zu 80 K bzw. 2 bar erkennen. Diese sind auf die Ungenauigkeiten in der Modellierung der chemischen Kinetik des verwendeten Reaktionsmechanismus sowie auf Messungenauigkeiten der experimentellen Resultate zurückzuführen.

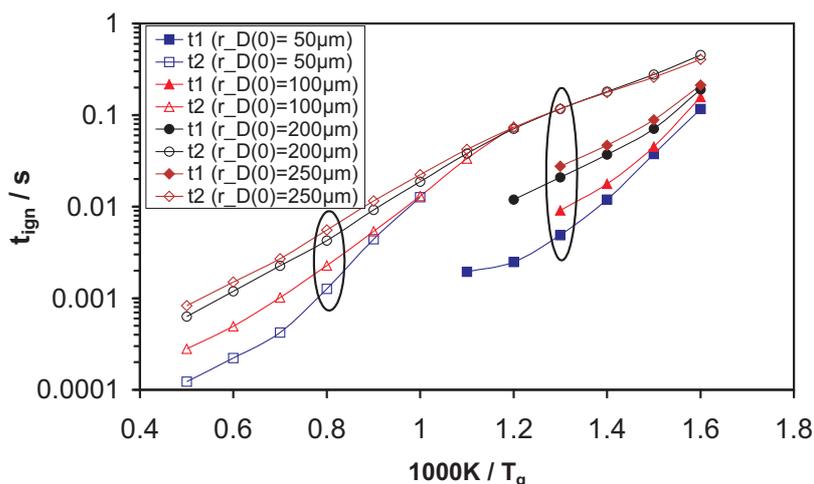
Eine analoge Abhängigkeit der Zündmodi von Umgebungstemperatur und -druck bei der

Zündung von Einzeltropfen wurde für n-Dodekan experimentell von Tanabe et al. [128] sowie für n-Dekan experimentell von Moriue et al. [79] und numerisch von Cuoci et al. [25] festgestellt. In allen Fällen wurden Regionen kalter Flammen sowie ein- und zweistufiger Zündungen ermittelt, die dem hier für n-Heptan beschriebenen Verhalten ähnlich sind.

## 4.4 Einfluss des Tropfenradius auf den Zündprozess

Technische Brennstoffsprays bestehen aus einer Vielzahl von Tropfen mit unterschiedlichen Durchmessern bzw. Radien. Um das Zündverhalten eines Sprays besser beschreiben und modellieren zu können, ist es somit von erheblicher Bedeutung, den Einfluss des Tropfenradius auf das Zündverhalten eines einzelnen Tropfens beschreiben zu können.

Deshalb wird hier der Einfluss des Tropfenradius auf die Zündverzugszeit eines Einzeltropfens untersucht. Da dieser Einfluss eine starke Abhängigkeit von der umgebenden Gastemperatur aufweist, wurde der Zündprozess von Einzeltropfen für unterschiedliche Radien unter gleichzeitiger Variation der Gastemperatur untersucht.



**Abbildung 4.10:** Arrheniusdiagramm der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur unterschiedlicher Tropfenradien ( $p = 8$  bar,  $T_D(0) = 384$  K)

Abbildung 4.10 zeigt das Arrheniusdiagramm für n-Heptantropfen bei  $p = 8$  bar für vier verschiedene Tropfenradien. Es ist der (typische) Verlauf der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von dem Inversen der Gastemperatur zu erkennen. In der Abbildung ist sowohl die totale Zündverzugszeit  $t_2$  der zweiten Stufe der Zündung (im folgenden auch Hochtemperaturzündung) als auch, für den Fall einer zweistufigen Zündung, die Zündverzugszeit  $t_1$  der ersten Stufe der Zündung (im folgenden auch Niedertemperaturzündung) aufgetragen. Abbildung 4.10 offenbart bereits die unterschiedliche Abhängigkeit der totalen Zündverzugszeit vom Tropfenradius für unterschiedliche Gastemperaturen. Während oberhalb einer Umgebungstemperatur von 1100 K eine deutliche Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius

zu erkennen ist, zeigt die Zündverzugszeit unterhalb 1100 K mit sinkender Umgebungstemperatur eine immer stärkere Insensitivität gegenüber dem Radius. Die Erklärung für dieses Verhalten bedarf einer Betrachtung der Detailprozesse, die in der den Tropfen umgebenden Gasphase ablaufen, bevor es zur Zündung des Heptantropfens kommt. Zunächst verdunstet der Brennstoff n-Heptan an der Tropfenoberfläche und liegt somit auch gasförmig vor. Physikalische Transportprozesse, wie Diffusion und Wärmeleitung, sorgen dafür, dass zum einen eine Vermischung von dem Brennstoff n-Heptan und der umgebenden Luft stattfindet und dass zum anderen dieses Brennstoff/Luft-Gemisch durch die umgebende heiße Luft aufgeheizt wird. Die beschriebenen Vorgänge benötigen Zeit, die sich in der Zündverzugszeit des Heptantropfens niederschlägt. Einen weiteren Beitrag zur Zündverzugszeit des Tropfens leistet die chemische Kinetik, da die chemische Umwandlung von Brennstoff und Sauerstoff zu den Reaktionsprodukten nicht unendlich schnell abläuft<sup>3</sup>. Somit setzt sich die Zündverzugszeit aus den Beiträgen der physikalischen Transportprozesse und der chemischen Kinetik zusammen<sup>4</sup>. Wie in Abschnitt 1.2 erwähnt, weisen diese Prozesse unterschiedliche, u. a. von der Temperatur abhängige Zeitskalen auf. Zur Beschreibung dieser unterschiedlichen Zeitskalen eignet sich die dimensionslose Damköhlerzahl. Sie ist definiert als das Verhältnis der typischen Zeitskala des physikalischen Transports zur typischen Zeitskala der chemischen Kinetik [58, 60].

$$\text{Da} = \frac{\tau_{\text{trans}}}{\tau_{\text{chem}}} \quad (4.3)$$

Für Temperaturen oberhalb 1100 K ist die Damköhlerzahl für Heptantropfen der untersuchten Größe groß, da die chemische Kinetik auf einer wesentlich kürzeren Zeitskala als die physikalischen Transportprozesse abläuft. In diesem Temperaturbereich sind die physikalischen Transportprozesse zeitlimitierend (siehe Abschnitt 4.2). Da die chemische Kinetik eine bedeutend stärkere Temperaturabhängigkeit ( $\propto \exp(a/T)$ , siehe Abschnitt 4.2) als die physikalischen Transportprozesse ( $D \propto T^{3/2}$ ,  $\lambda \propto \sqrt{T}$  [12, 138]) aufweist, nimmt die Bedeutung der chemischen Kinetik als zeitlimitierender Faktor mit sinkender Umgebungstemperatur zu. Dieser Umstand ist gleichbedeutend mit einer kleiner werdenden Damköhlerzahl.

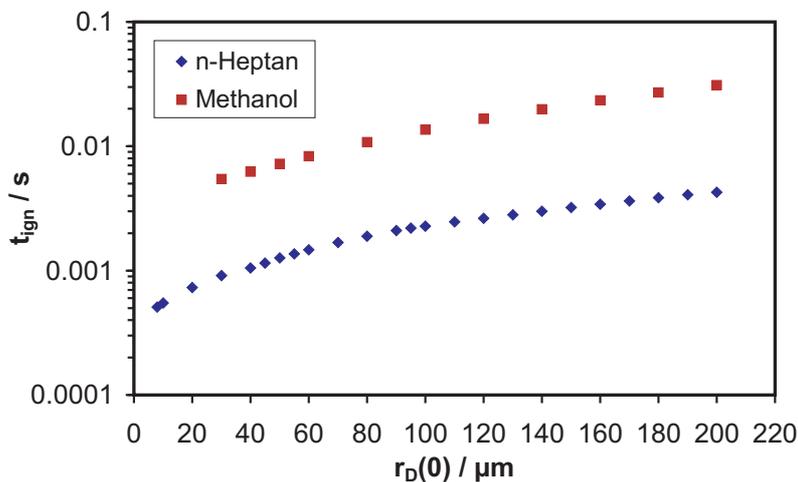
Eine Verringerung des Tropfenradius bedingt aufgrund der Verkleinerung der typischen Längenskalen eine Veränderung dieser Zeitskala<sup>5</sup>. Die Zeitskala der chemischen Kinetik bleibt jedoch bei einer Variation des Tropfenradius unverändert. Die Variation des Tropfenradius hat, aufgrund der oben dargestellten unterschiedlichen Relevanz der Transportprozesse hinsichtlich des Zündverzugs, abhängig von der Umgebungstemperatur unterschiedliche

<sup>3</sup>Dieser Umstand lässt sich z. B. an den in Abschnitt 4.2 in Abbildung 4.5 gezeigten Zündverzugszeiten von stöchiometrischen Brennstoff/Luft-Gemischen erkennen.

<sup>4</sup>Aufgrund der hohen anfänglichen Tropfentemperatur von  $T_D(0) = 384 \text{ K}$  wird der weitere Beitrag der Aufheizung des Tropfens zur Zündverzugszeit hier nicht diskutiert. Die Untersuchung dieses Phänomens erfolgt in Abschnitt 4.6.

<sup>5</sup>Dabei ist zu beachten, dass z. B. das Verhältnis von Zünd- bzw. Flammenradius eines Tropfens unter einer Variation des Tropfenradius nahezu konstant bleibt [74, 90].

Auswirkungen auf die Zündverzugszeit. Bei hoher Umgebungstemperatur, bei der die physikalischen Transportprozesse zeitlimitierend sind, verkürzt sich die Zündverzugszeit mit geringer werdendem Tropfenradius. Abbildung 4.11 verdeutlicht dieses Verhalten für eine Umgebungstemperatur von  $T_g = 1250$  K.



**Abbildung 4.11:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius ( $T_g = 1250$  K,  $p = 8$  bar, n-Heptan:  $T_D(0) = 384$  K, Methanol:  $T_D(0) = 300$  K)

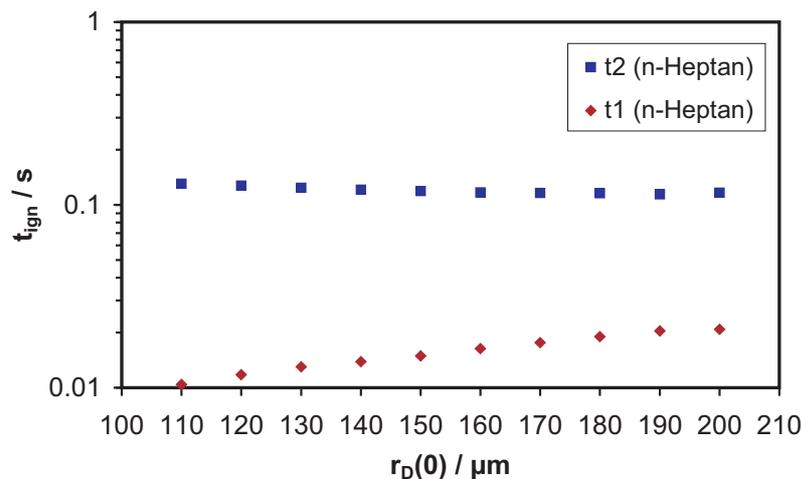
Die Abbildung zeigt einen Anstieg der Zündverzugszeit mit steigendem Tropfenradius. Bei Heptantropfen mit einem Radius kleiner als  $8 \mu\text{m}$  findet keine Selbstzündung<sup>6</sup> statt, da der verdunstende Brennstoff durch die rasche Diffusion so stark verteilt wird, dass kein zündfähiges Gemisch entsteht. Aufgrund seiner geringen Größe ist der Tropfen somit bereits komplett verdunstet, bevor die Selbstzündung einsetzen kann. Eine Selbstzündung des entstandenen Brennstoff/Luft-Gemisches tritt ebenfalls nicht auf, da dieses Gemisch aufgrund der raschen Verteilung des Brennstoffs zu mager ist. Es ist dabei zu beachten, dass diese Ausdünnung des Brennstoffs dadurch bedingt ist, dass (durch die gewählten Randbedingungen (siehe Abschnitt 3.1)) ein offenes System modelliert wird, das den Stofftransport über die Systemgrenze erlaubt. Eine Vergrößerung des Radius von  $110 \mu\text{m}$  auf  $200 \mu\text{m}$  führt dabei zu einer Verlängerung der Zündverzugszeit um ungefähr den Faktor 1.75 und zeigt somit, dass diese Verlängerung auch im Vergleich zu den Einflüssen anderer Umgebungsparameter als signifikant betrachtet werden kann.

Dieses Verhalten lässt sich auch bei der Untersuchung von Methanoltropfen im entsprechenden Temperaturbereich feststellen. In Abbildung 4.11 ist auch die Radiusabhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanoltropfens mit einer Anfangstemperatur von 300 K bei einer Gastemperatur von 1250 K dargestellt. Man erkennt auch hier einen Anstieg der Zündverzugszeit um ca. den Faktor zwei bei einer Vergrößerung des Tropfenradius von  $110 \mu\text{m}$  auf

<sup>6</sup>Unter Selbstzündung wird dabei eine Zündung des Brennstoffs verstanden, bei der eine maximale Temperatur erreicht wird, die der Flammentemperatur eines brennenden Tropfens entspricht.

200  $\mu\text{m}$ , so dass auch für diesen Fall die Abhängigkeit des Zündverzugs vom Radius als durchaus signifikant bezeichnet werden kann.

Für Temperaturen unterhalb 900 K hingegen sorgt die größere Relevanz der Zeitskala der chemischen Kinetik für eine Insensitivität der totalen Zündverzugszeit gegenüber dem Tropfenradius. Da die Zeitskala der chemischen Kinetik bei einer Radiusvariation unverändert bleibt, zeigt auch die Zündverzugszeit nahezu keine Abhängigkeit vom Radius. In Abbildung 4.12 lässt sich dieses Verhalten für die Umgebungstemperatur von  $T_g = 769\text{ K}$  erkennen.



**Abbildung 4.12:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius (n-Heptan,  $T_g = 769\text{ K}$ ,  $p = 8\text{ bar}$ )

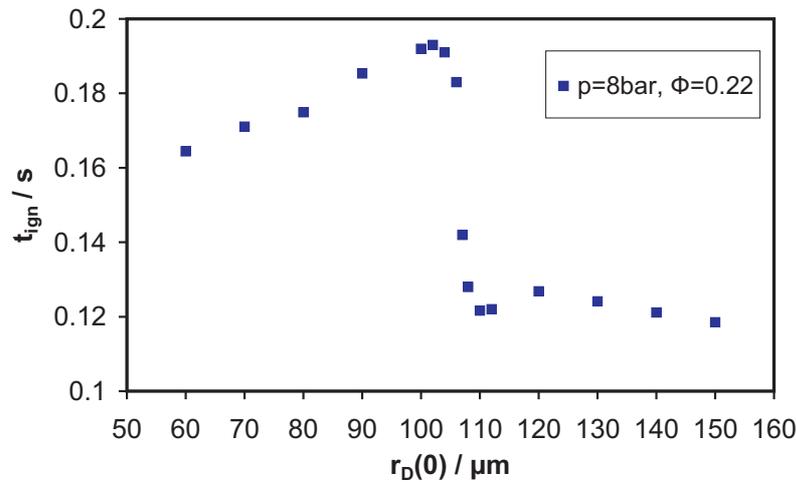
Die totale Zündverzugszeit  $t_2$  bleibt bei einer Radiusvariation von 110  $\mu\text{m}$  bis 200  $\mu\text{m}$  nahezu unverändert. Tropfen mit einem Radius kleiner als 110  $\mu\text{m}$  zeigen keine Selbstzündung. Die Gründe für dieses Verhalten entsprechen dabei den Erläuterungen bei einer Gastemperatur von  $T_g = 1250\text{ K}$ . Lediglich der Radius, unterhalb dessen keine Zündung stattfindet, weist aufgrund der verlangsamten chemischen Kinetik einen höheren Wert auf. Für die erste Zündverzugszeit  $t_1$  der zweistufigen Zündung spielt die chemische Kinetik hingegen eine untergeordnete Rolle. Da die erste Stufe der zweistufigen Zündung durch die Niedertemperaturkinetik initiiert wird [106, 107], stellen hier erneut die Transportprozesse den geschwindigkeitsbestimmenden Faktor dar. Somit ergeben sich mit steigendem Radius steigende Zündverzugszeiten der ersten Stufe der Zündung  $t_1$ , wie die Abbildungen 4.10 und 4.12 zeigen.

Die hier beschriebene unterschiedliche Relevanz der Zeitskalen der Transportprozesse und der chemischen Kinetik bei unterschiedlichen Umgebungstemperaturen, lässt sich auch anhand der Einflüsse von anderen Umgebungsparametern erkennen (siehe Abschnitt 4.7, Abschnitt 4.5, [122]). Die aus den hier erhaltenen Resultaten gezogenen Schlussfolgerungen ermöglichen auch eine Erklärung der in der Literatur dargestellten zum Teil sehr unterschiedlichen Abhängigkeiten der Zündverzugszeiten vom Radius bzw. Durchmesser von

Einzeltröpfen. Stapf beschreibt eine starke Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius für Methanoltropfen [118]. Da in den untersuchten Fällen für die Gastemperaturen Werte  $\geq 1100$  K gewählt wurden, ist von einer großen Damköhlerzahl und somit starken Radiusabhängigkeit auszugehen. Abweichend davon stellt sich die Situation für die Resultate von Saitoh et al. [105] und Takei et al. [133] dar. Da die Umgebungstemperatur bei diesen Untersuchungen nie 1050 K übersteigt, ist die entsprechende Damköhlerzahl so gering, dass die chemische Kinetik für den Zündprozess geschwindigkeitsbestimmend ist. Somit lässt sich in diesen Fällen kein Anstieg der Zündverzugszeit mit ansteigendem Tropfenradius beobachten. Bei den hier durchgeführten Untersuchungen lässt sich dieses Verhalten zwar nur unterhalb 900 K feststellen, doch ist zu beachten, dass die Resultate von Saitoh et al. und Takei et al. bei einem Umgebungsdruck von  $p = 1$  bar erzielt wurden. Da sich die typische chemische Zeitskala mit einer Druckerhöhung vermindert [138], die typische Zeitskala des physikalischen Transports hingegen erhöht wird ( $D \propto 1/p$  [12, 138]), verschiebt sich der Übergang in der vom physikalisch zum chemisch zeitlimitierten Zündverzug mit steigendem Druck hin zu niedrigeren Temperaturen. Im Gegensatz dazu stehen die numerischen Ergebnisse von Tsukamoto et al. [133], die eine starke Radiusabhängigkeit der Zündverzugszeit von Heptantropfen bei einer vergleichsweise niedrigen Gastemperatur von 850 K aufweisen. Die Ursache für dieses konträre Verhalten liegt vermutlich in der verwendeten irreversiblen Einschnittreaktion zur Modellierung der chemischen Kinetik, die es nicht ermöglicht, das NTC-Verhalten des n-Heptans adäquat abzubilden. Eigene numerische Resultate unter Verwendung eines detaillierten Reaktionsmechanismus [122] sowie die Resultate von Kang und Baek [55] zeigen den starken Einfluss anderer Umgebungsparameter auf die Radiusabhängigkeit der Zündverzugszeit.

Ergänzend zu den dargelegten Resultaten soll der Einfluss des Tropfenradius auf den Zündprozess für ein abgeschlossenes, isobares System untersucht werden. Die Bedingungen am äußeren Rand unterscheiden sich dabei, wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, von den Randbedingungen des bisher modellierten offenen Systems. Unter einem abgeschlossenen, isobaren System wird hier ein System verstanden, über dessen Rand weder Massen- noch Energieaustausch mit der Umgebung stattfindet. Es wird jedoch nicht ein abgeschlossener Behälter mit einem ortsfesten Rand simuliert. Vielmehr bleibt der Druck im System während der Simulation zeitlich und räumlich konstant. Aufgrund der Änderung der Dichte während der Simulation (bedingt durch die Verdunstung des Brennstoffs und durch chemische Reaktion) dehnt sich das System folglich aus bzw. schrumpft (je nach Dichteänderung). Durch die Wahl des Drucks und des Verhältnisses von Tropfenradius zu äußerem Rand des Systems wird nun aufgrund der Abgeschlossenheit des Systems implizit ein globales Äquivalenzverhältnis festgelegt. Dies hat zur Folge, dass es im Gegensatz zum offenen System auch zu einer Selbstzündung des Brennstoff/Luft-Gemisches kommt, wenn der Tropfen bereits komplett verdunstet ist.

Abbildung 4.13 zeigt das beschriebene Verhalten. Auch für Tropfenradien unterhalb von

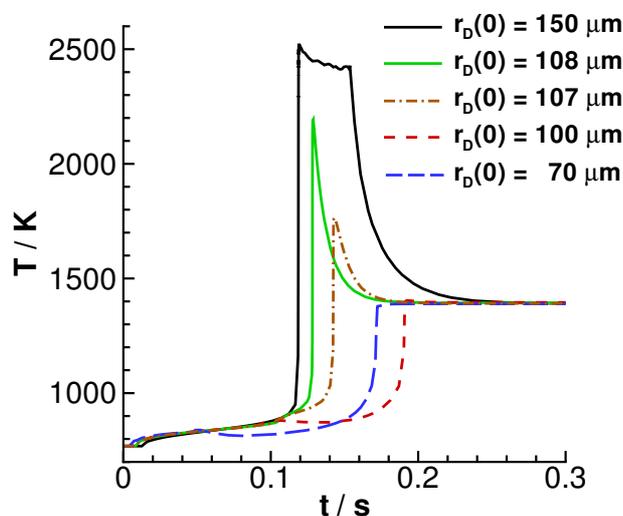


**Abbildung 4.13:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan,  $T_g = 769 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ ,  $\Phi = 0.22$ )

110  $\mu\text{m}$  findet eine Selbstzündung statt. Jedoch steigt die Zündverzugszeit beim Unterschreiten dieses Radius im Fall des offenen Systems rapide an, wohingegen bei der weiteren Verkleinerung des Tropfenradius die Zündverzugszeit sich mit sinkendem Tropfenradius ebenfalls verringert. Dieser Anstieg wird durch das in diesem Bereich mit geringer werdendem Tropfenradius sinkende lokale Äquivalenzverhältnis am Zündort verursacht. Da mit sinkendem Radius der Tropfen in kürzerer Zeit komplett verdunstet ist, setzt die Ausdünnung des Brennstoffs früher ein. Da somit in der näheren Umgebung des Tropfens das lokale Äquivalenzverhältnis sinkt, verlängert sich der Zündverzug. Der Grund dafür ist, dass die Zündverzugszeit von Brennstoff/Luft-Gemischen im Bereich der vorliegenden Äquivalenzverhältnisse mit magerer werdender Mischung zunimmt [19, 43]. Der beschriebene rapide Anstieg der Zündverzugszeit in einem engen Radiusbereich wird auch von Moriue et al. bei der numerischen Simulation der Zündung von n-Heptantropfen in einem geschlossenen Volumen beobachtet [80].

Der Umstand, ob die Zündung vor oder nach der kompletten Verdunstung des Tropfens stattfindet, hat aber nicht nur Auswirkungen auf die Zündverzugszeit, sondern beeinflusst auch die maximale, im System auftretende Flammentemperatur. Betrachtet man die beiden Extremfälle eines brennenden Tropfens und eines homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches, das durch die vorherige komplette Verdunstung eines Brennstofftropfens entstanden ist, so unterscheiden sich die lokalen Äquivalenzverhältnisse in der Reaktionszone deutlich voneinander. Während sich bei der laminaren, nicht-vorgemischten Flamme des brennenden Tropfens die Reaktionszone am Ort stöchiometrischer Gemischzusammensetzung befindet [138], entspricht im Fall des homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches das lokale dem globalen Äquivalenzverhältnis. Dieses unterscheidet sich mit  $\Phi = 0.22$  deutlich vom stöchiometrischen Äquivalenzverhältnis  $\Phi = 1$ . Die unterschiedlichen Äquivalenzverhältnisse der beiden Fälle

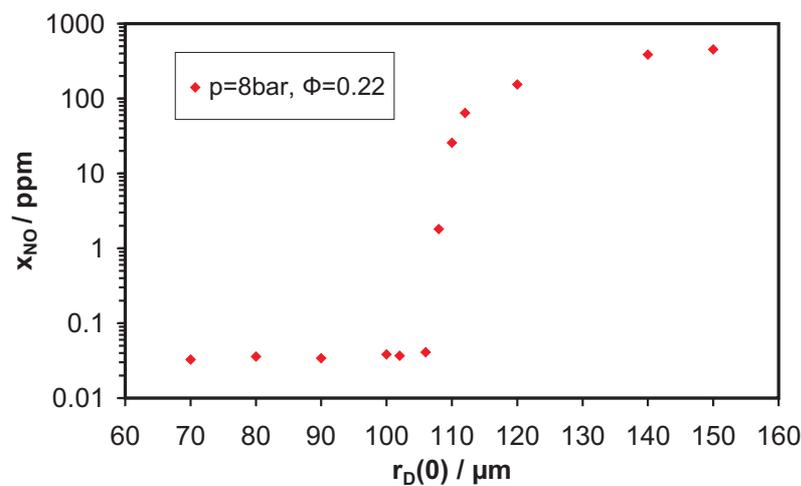
führen zu unterschiedlichen Flammentemperaturen, wie Abbildung 4.14 zeigt.



**Abbildung 4.14:** Zeitliche Evolution der maximalen Flammentemperatur eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan,  $T_g = 769 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ ,  $\Phi = 0.22$ )

Die Abbildung stellt die zeitliche Evolution der maximalen Flammentemperatur des Systems für fünf verschiedene Tropfenradien dar. Während im Fall des größten gezeigten Tropfenradius von  $r_D(0) = 150 \mu\text{m}$  die Ausbildung einer Flamme bei nahezu stöchiometrischen Bedingungen an der hohen Temperatur von  $T \approx 2400 \text{ K}$  zu erkennen ist, steigt die maximale Temperatur im Fall des kleinsten Radius von  $r_D(0) = 70 \mu\text{m}$  lediglich auf  $T \approx 1400 \text{ K}$  an. Anhand des steilen Temperaturanstiegs lassen sich für alle gezeigten Fälle die Zeitpunkte der Zündung erkennen. Mit Ausnahme des größten Tropfenradius ( $r_D(0) = 150 \mu\text{m}$ ) ist für die gezeigten Radien der Tropfen bereits komplett verdunstet, bevor die Zündung einsetzt. Dennoch lässt sich im Gegensatz zu dem auf Seite 55 beschriebenen offenen System für alle Tropfenradien eine Zündung und anschließende Temperaturerhöhung beobachten. Die Ursache dafür ist die Tatsache, dass nun ein abgeschlossenes System simuliert wird und dadurch eine Ausdünnung des Brennstoffs, die eine Zündung verhindert, nicht stattfinden kann. Es ist zu beachten, dass nach entsprechender Zeit, d. h. wenn in allen Fällen der Tropfen komplett verdunstet ist, sich die identische (maximale) Temperatur einstellt. Dieses Ergebnis ist zu erwarten, da nach der kompletten Verdunstung und kompletten Reaktion des Brennstoffs mit der Luft die untersuchten Systeme sich lediglich in der räumlichen Ausdehnung unterscheiden, da alle Fälle denselben Druck sowie dasselbe globale Äquivalenzverhältnis aufweisen. Jedoch unterscheiden sich die analysierten Fälle hinsichtlich der chemischen Zusammensetzung der einzelnen Spezies voneinander aufgrund der unterschiedlichen zeitlichen Entwicklung. So ist die zeitliche Evolution der Temperatur für die Bildung von Stickoxiden von erheblicher Bedeutung [138]. Das Auftreten hoher Temperaturen begünstigt dabei die Stickoxidbildung. So ergibt sich nach dem Abbrand des Brennstoffs im Fall des bren-

nenden Tropfens ( $r_D(0) = 150 \mu\text{m}$ ) mit einer maximalen Temperatur von  $T \approx 2400 \text{ K}$  ein NO-Molenbruch von  $x_{\text{NO}} = 4.5 \cdot 10^{-4}$  ( $\hat{=}$  450 ppm), wohingegen im Fall der kompletten Verdunstung des Tropfens und anschließender Zündung ( $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ ) mit einer maximalen Temperatur von  $T \approx 1400 \text{ K}$  der Molenbruch des Stickoxids lediglich  $x_{\text{NO}} = 3.8 \cdot 10^{-8}$  ( $\hat{=}$  0.04 ppm) beträgt. Die rapide Absenkung der Stickoxidbildung wird in Abbildung 4.15 veranschaulicht. Die Änderung der Stickoxidkonzentration um über vier Größenordnungen ist deutlich erkennbar. Die Lage des Abfalls der Stickoxidkonzentration bezüglich des Tropfenradius stimmt mit der Lage des Anstiegs in der Zündverzugszeit in Abbildung 4.13 überein.



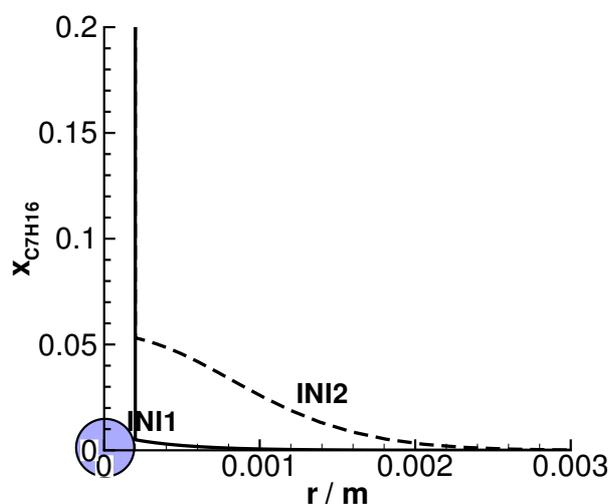
**Abbildung 4.15:** Abhängigkeit der Stickoxidbildung vom Tropfenradius eines abgeschlossenen, isobaren Systems (n-Heptan,  $T_g = 769 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ ,  $\Phi = 0.22$ )

Der Unterschied von vier Größenordnungen offenbart die Relevanz des Zünd- und Verbrennungsverlaufs hinsichtlich der Stickoxidbildung, auf die z. B. von Rah et al. [4,97] in anderen Arbeiten hingewiesen wird. Zur Vermeidung dieser Stickoxidbildung sollte somit in global mageren Sprayflammen eine bestmögliche Homogenisierung des Brennstoff/Luft-Gemisches durch eine komplette Verdunstung des Brennstoffs vor der Verbrennung angestrebt werden, um den Abbrand von Einzeltropfen zu vermeiden.

## 4.5 Einfluss einer Vorverdampfung auf den Zündprozess

Eine Schwierigkeit bei Einzeltropfenexperimenten besteht in der Gewährleistung von definierten Anfangsbedingungen. So ist es äußerst schwierig, bei der Erzeugung des Brennstofftropfens bzw. des Transports des Tropfens in die Versuchskammer eine Vorverdampfung des Brennstoffs zu vermeiden [87, 129]. Somit ist es nur schwer möglich, die Menge an (vor-

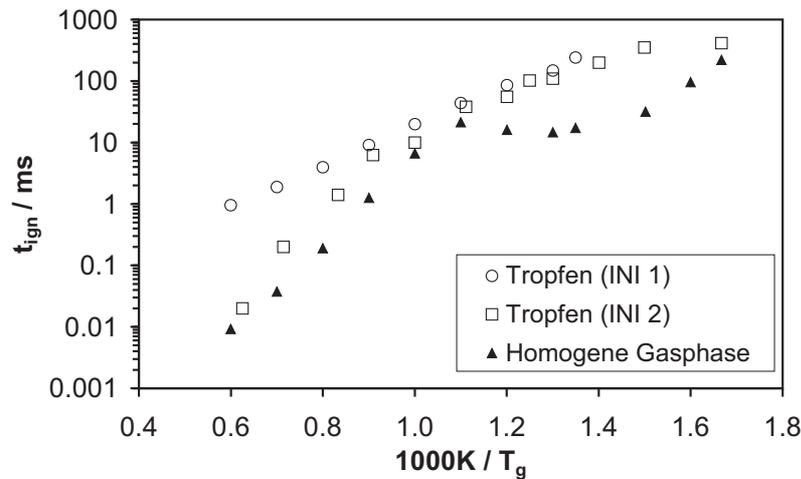
verdampftem) Brennstoff zu Beginn der Messung zu kontrollieren bzw. zu minimieren. Aus diesem Grund wird der Einfluss von zu Beginn in der Gasphase vorhandenem (vorverdampften) Brennstoff auf die Zündverzugszeit untersucht. Um die Sensitivität eines zündenden Einzeltropfens bezüglich des anfänglichen Brennstoffgehalts in der Gasphase zu analysieren, werden Simulationen mit zwei verschiedenen Anfangsbedingungen durchgeführt. Dabei unterscheiden sich die Anfangsbedingungen lediglich hinsichtlich des vorhandenen Brennstoffs (n-Heptan) in der Gasphase. Abbildung 4.16 zeigt die beiden unterschiedlichen Anfangsbedingungen.



**Abbildung 4.16:** Zwei verschiedene Anfangsbedingungen: kein gasförmiges n-Heptan (—, INI1), vorverdampftes n-Heptan (- - -, INI2)

Mit INI1 wird im folgenden der Fall ohne gasförmiges n-Heptan zu Beginn der Simulation bezeichnet. INI2 bezeichnet den Fall einer kleinen Menge vorverdampften n-Heptans. Die Zündverzugszeiten von n-Heptantropfen für Gastemperaturen von 600 K bis 1600 K sind für beide Fälle in Abbildung 4.17 dargestellt. Des weiteren zeigt die Abbildung die Zündverzugszeiten einer homogenen stöchiometrischen n-Heptan/Luft-Mischung bei den entsprechenden Temperaturen [122].

Die Zündverzugszeiten der homogenen Mischung zeigen die typische Abhängigkeit von der Temperatur, wie sie in Abschnitt 4.2 erläutert wurde. Oberhalb 1000 K lässt sich eine starke Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Temperatur erkennen. Für den Fall des n-Heptantropfens ohne vorverdampften Brennstoff (INI1) sinkt oberhalb von 1000 K die Zündverzugszeit bei weitem nicht so stark mit steigender Temperatur wie im Fall der homogenen Mischung. Die Ursache für dieses Verhalten liegt darin, dass sich im Fall des Tropfens zunächst lokal ein zündfähiges Gemisch bilden muss. Die Bildung dieses lokalen zündfähigen Zustands wird durch physikalische Transportprozesse, wie Diffusion und Wärmeleitung verursacht. Für Temperaturen oberhalb 1000 K sind diese Transportprozesse zeitbestimmend



**Abbildung 4.17:** Arrheniusdiagramm der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur für zwei verschiedene Anfangsbedingungen (INI1, INI2, n-Heptan,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ , homogene Gasphase  $\lambda = 1$ )

für den Zündprozess eines n-Heptantropfens. Die Damköhlerzahl ist verglichen mit Umgebungstemperaturen unterhalb 1000 K wesentlich höher. Der Beitrag der chemischen Kinetik zur Zündverzugszeit ist hingegen von geringer Bedeutung. Dies lässt sich auch an dem Unterschied der Zündverzugszeiten des Tropfens und der homogenen Mischung von bis zu zwei Größenordnungen ablesen. Ein weiterer Aspekt dieses Phänomens ist die Tatsache, dass die Zündverzugszeiten im Fall des vorverdampften n-Heptans (INI2) stark den Zündverzugszeiten der homogenen Mischung ähneln. Hier ist der Beitrag der physikalischen Transportprozesse zur Zündverzugszeit wesentlich kleiner, da zu Beginn der Simulation schon teilweise ein Gemisch aus Brennstoff und Oxidans vorliegt.

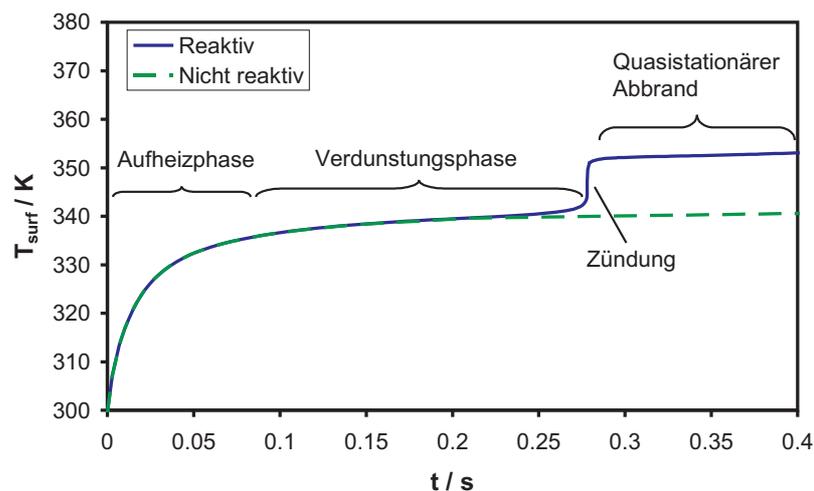
Für Temperaturen unterhalb 1000 K lässt sich ein völlig anderes Verhalten beobachten. Der n-Heptantropfen zeigt für die beiden Anfangsbedingungen INI1 und INI2 nahezu die gleiche Zündverzugszeit. Die Zündverzugszeiten des homogenen Gemisches sind um bis zu eine Größenordnung geringer als die des Tropfens. Dieses Verhalten zeigt den in diesem Temperaturbereich wesentlich stärkeren Einfluss der chemischen Kinetik auf die Zündverzugszeit. Des Weiteren stellt dieses Verhalten die starke Interaktion zwischen den physikalischen und chemischen Prozessen dar, die in diesem Temperaturbereich vergleichbare charakteristische Zeitskalen aufweisen. Die gezogenen Schlussfolgerungen stimmen mit den in Abschnitt 4.2 gefundenen Erkenntnissen überein.

Der Einfluss der Vorverdampfung auf die Zündverzugszeit kann zusammenfassend als durchaus signifikant bezeichnet werden. Im Temperaturbereich von 600 K bis 1000 K ist der Einfluss der Vorverdampfung jedoch als gering anzusehen. Die Sensitivität des Zündprozesses bezüglich einer Vorverdampfung kann sich für andere Brennstoffe aufgrund des unterschiedlichen Verdunstungsverhaltens sowie der unterschiedlichen stöchiometrischen Gemischzu-

sammensetzung von dem untersuchten Fall des n-Heptans deutlich unterscheiden.

## 4.6 Einfluss der Tropfentemperatur auf den Verbrennungsprozess

Weist ein Brennstofftropfen eine anfängliche Temperatur weit unterhalb seiner Kühlgrenztemperatur<sup>7</sup> auf, lässt sich die zeitliche Entwicklung des Tropfens bis zum Zeitpunkt der Selbstzündung in zwei Phasen aufteilen [77, 138]. Zu Beginn, wenn die Tropfentemperatur noch gering ist, verdunstet nur eine geringe Menge an Brennstoff, die Oberflächentemperatur des Tropfens jedoch steigt schnell an. Dieser Zeitabschnitt wird als Aufheizphase bezeichnet. Mit zunehmender Annäherung der Oberflächentemperatur an die Kühlgrenztemperatur ändert sich die Oberflächentemperatur nur noch in geringem Maße, der verdunstende Massenstrom hingegen hat gegenüber der Aufheizphase stark zugenommen. Aus diesem Grund wird dieser Zeitabschnitt Verdunstungsphase genannt.

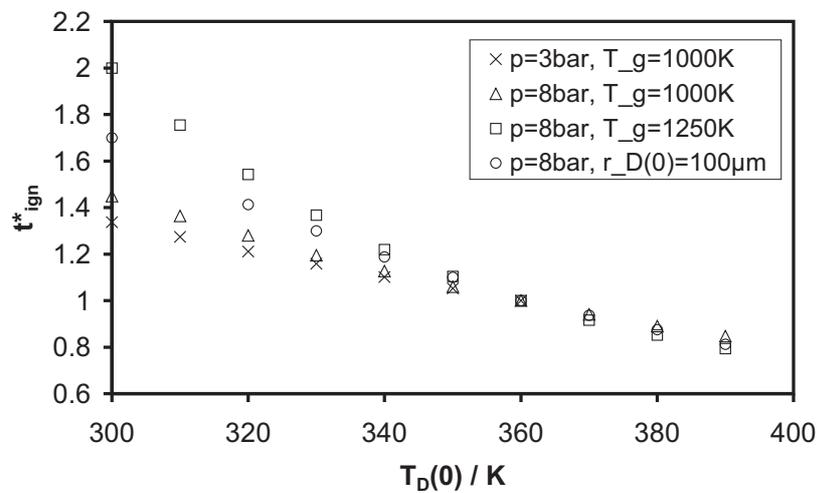


**Abbildung 4.18:** Identifizierung der Aufheizphase und der Verdunstungsphase anhand des zeitlichen Verlaufs der Oberflächentemperatur (Methanol,  $p = 3$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1000$  K,  $T_D(0) = 300$  K)

In Abbildung 4.18 sind die beiden Phasen anhand des zeitlichen Verlaufs der Oberflächentemperatur eines Methanoltropfens identifiziert. Der zeitlichen Evolution der Oberflächentemperatur für den Fall des selbstzündenden Tropfens ist der zeitliche Verlauf der

<sup>7</sup>Unter der Kühlgrenztemperatur versteht man die Temperatur, die der Tropfen annimmt, wenn er sich im Gleichgewicht mit seiner Umgebung befindet, d. h. wenn der Verdunstungsprozess quasistationär abläuft. Da der Tropfen aufgrund der aufzubringenden Verdampfungsenthalpie Energie verliert, liegt diese Kühlgrenztemperatur deutlich unterhalb der Umgebungs- bzw. Siedetemperatur des Tropfens [33, 59, 114, 140].

Oberflächentemperatur im nicht reaktiven Fall gegenübergestellt. Nach der Aufheiz- und Verdunstungsphase ist der Zeitpunkt der Zündung deutlich am sprunghaften Anstieg der Oberflächentemperatur von ca. 340 K auf ca. 350 K zu erkennen. Im nicht reaktiven Fall hingegen strebt die Oberflächentemperatur gegen die Kühlgrenztemperatur des Tropfens von ca. 341 K. Die Kühlgrenztemperatur des Tropfens ist dabei von den äußeren Bedingungen, wie Umgebungsdruck und Gastemperatur, abhängig. Die Dauer der anfänglichen Aufheizphase wird hauptsächlich durch die anfängliche Tropfentemperatur bestimmt [87]. Im folgenden wird deshalb die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur untersucht.



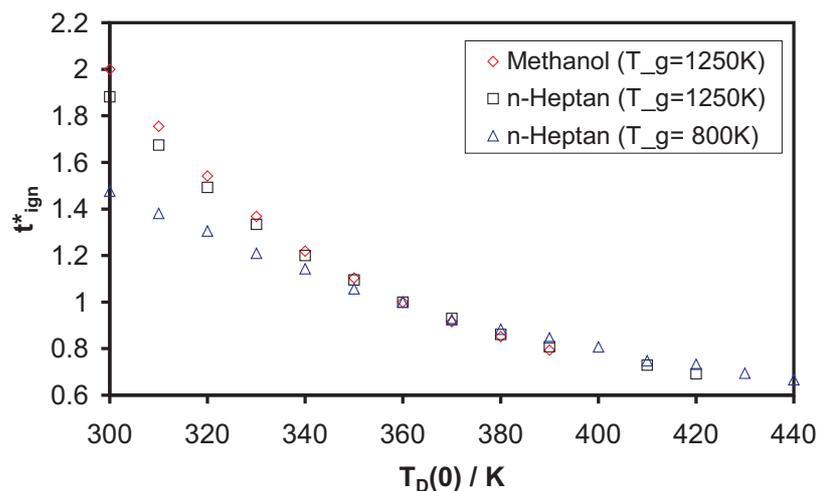
**Abbildung 4.19:** Abhängigkeit der normierten Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen (Methanol,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

Abbildung 4.19 zeigt den Verlauf der Zündverzugszeit bei Variation der Anfangstropfentemperatur für den Brennstoff Methanol bei verschiedenen Umgebungsbedingungen. Um eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen zu erreichen, ist die auf  $T_D(0) = 360 \text{ K}$  normierte Zündverzugszeit  $t_{ign}^*$  aufgetragen.

$$t_{ign}^* = \frac{t_{ign}(T_g, T_D)}{t_{ign}(T_g, T_D = 360 \text{ K})} \quad (4.4)$$

Wie erwartet nimmt die Zündverzugszeit in allen Fällen mit steigender Tropfentemperatur ab. Für einen gegebenen Druck zeigt der Fall mit der höchsten umgebenden Gastemperatur die stärkste Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Tropfentemperatur. Wird die Gastemperatur reduziert, sinkt somit auch die Kühlgrenztemperatur des Tropfens. Somit verkürzt sich bei gleicher Tropfentemperatur die Dauer der Aufheizphase, und die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur fällt geringer aus. Darüber hinaus nimmt die Bedeutung der physikalischen Transportprozesse, die im Gegensatz zur chemischen Kinetik wesentlich von der Tropfentemperatur beeinflusst werden, als

geschwindigkeitsbestimmender Faktor mit sinkender Umgebungstemperatur ab, da die Geschwindigkeit der chemischen Kinetik eine exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur aufweist [138]. Dies führt ebenfalls zu einer Abschwächung der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Tropfentemperatur. Aufgrund der geringeren Bedeutung der physikalischen Transportprozesse fällt auch die Abhängigkeit der Zündverzugszeit für den Fall kleinerer Tropfenradien geringer aus. Dieses Verhalten ist in Abbildung 4.19 erkennbar. Auch bei einem geringeren Umgebungsdruck weist die Zündverzugszeit eine nicht so starke Abhängigkeit von der Tropfentemperatur auf. Dieses Verhalten hat zwei unterschiedliche Ursachen. Zum einen wird die chemische Kinetik durch eine Druckerhöhung beschleunigt [138]. Somit verringert sich die typische chemische Zeitskala  $\tau_{\text{chem}}$  und den physikalischen Transportprozessen kommt als geschwindigkeitsbestimmende Prozesse größere Bedeutung zu. Zum anderen verlängert sich mit steigendem Druck die typische Zeitskala der Transportprozesse  $\tau_{\text{trans}}$  aufgrund der Druckabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten ( $D \propto 1/p$  [12, 138]), wodurch die zeitliche Limitierung des Zündprozesses durch die physikalischen Transportprozesse zusätzlich verstärkt wird.

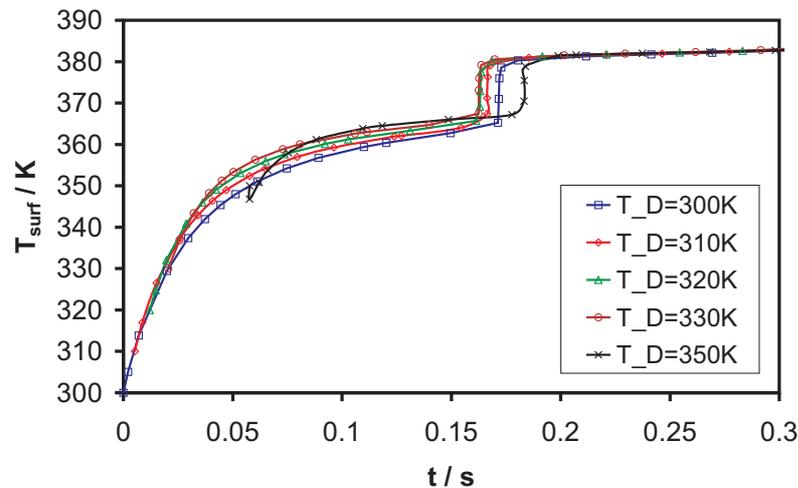


**Abbildung 4.20:** Abhängigkeit der normierten Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen ( $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

Der Brennstoff n-Heptan weist für hohe Gastemperaturen ein analoges Verhalten auf. Abbildung 4.20 verdeutlicht diesen Umstand. Die Abhängigkeiten der normierten Zündverzugszeit differieren nicht mehr als 10% bei identischen Umgebungsbedingungen. Die in Abbildung 4.20 gezeigte Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Tropfentemperatur für eine geringere Umgebungstemperatur ( $T_g = 800 \text{K}$ ) ist ebenfalls gegenüber der höheren Umgebungstemperatur ( $T_g = 1250 \text{K}$ ) deutlich vermindert. Auch für Brennstofftropfen bestehend aus einer iso-Oktan/n-Heptan-Mischung ergeben sich vergleichbare Ergebnisse [123]. Des Weiteren ist sowohl in Abbildung 4.19 als auch in Abbildung 4.20 eine Verringerung der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Tropfentemperatur für steigende Tropfentem-

peraturen erkennbar. Dieses Verhalten wird auf die Nichtlinearität der Abhängigkeit des Verdunstungsprozesses bzw. des verdunstenden Massenstroms von der Tropfentemperatur zurückgeführt. Somit kann festgestellt werden, dass bei einer ausreichend hohen anfänglichen Tropfentemperatur nahe der Kühlgrenztemperatur lediglich eine schwache Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Tropfentemperatur besteht [122]. Diese Abhängigkeit ist dabei hinsichtlich der Größenordnung im Vergleich zu anderen Abhängigkeiten, wie z. B. von der Umgebungstemperatur (siehe Abschnitt 4.2) oder dem Tropfenradius (siehe Abschnitt 4.4) als gering zu beurteilen. Ein analoges Verhalten wird von Saitoh et al. [105] für n-Heptantropfen berichtet. Auch hier sinkt die Zündverzugszeit mit steigender anfänglicher Tropfentemperatur. Auch wenn aufgrund der experimentellen Schwierigkeiten die Zündverzugszeiten nur für drei verschiedene Tropfentemperaturen bestimmt wurden, lässt sich dennoch auch anhand dieser Daten eine Reduktion des Einflusses für steigende Tropfentemperaturen erkennen.

Im folgenden soll die aufgezeigte Abhängigkeit des Zündverzugs von der Tropfentemperatur am Beispiel des Methanols genauer untersucht werden. Abbildung 4.21 zeigt die zeitliche Entwicklung der Oberflächentemperatur für verschiedene anfängliche Tropfentemperaturen. Die Zündung des Tropfens kann an dem abrupten Anstieg der Temperatur erkannt werden.

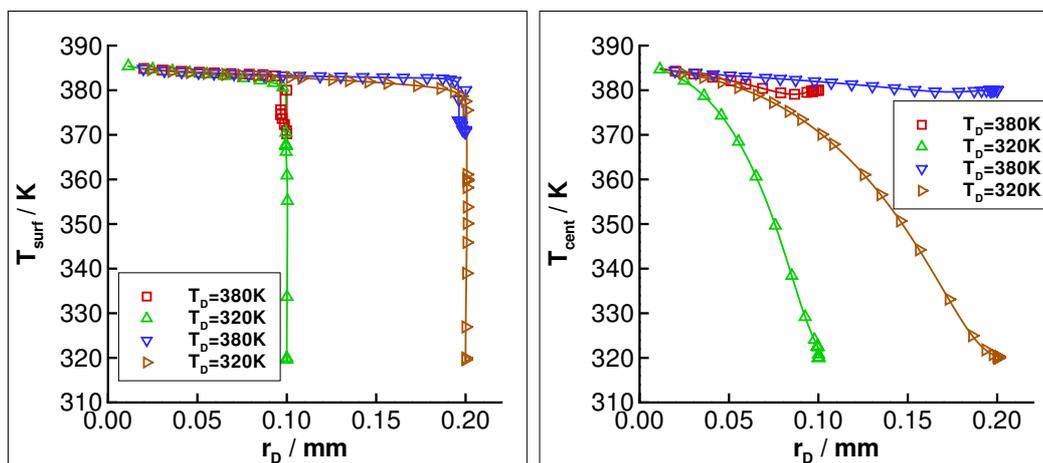


**Abbildung 4.21:** Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur für verschiedene anfängliche Tropfentemperaturen (Methanol,  $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1000$  K)

Da hier die Abhängigkeit der (Dauer der) Aufheizphase von der Tropfentemperatur untersucht werden soll, sind die Startzeitpunkte der Simulationen mit verschiedenen Tropfentemperaturen gegeneinander verschoben. Lediglich der Temperaturverlauf des Falls  $T_D(0) = 300$  K beginnt bei  $t = 0$ . Die anderen Fälle der höheren anfänglichen Tropfentemperaturen sind mit einem zeitlichen Offset versehen. Dieser Offset entspricht der jeweiligen Zeitspanne, nach der die Oberflächentemperatur des Falls  $T_D(0) = 300$  K zum ersten Mal die jeweilige Anfangstemperatur erreicht. Wie in Abbildung 4.21 erkennbar ist, zeigen

die Fälle von  $T_D(0) = 300\text{ K}$  bis  $T_D(0) = 330\text{ K}$  einen ähnlichen Temperaturverlauf. Die Oberflächentemperatur verläuft mit höherer Initialisierungstemperatur etwas höher. Dies ist auf den Umstand zurückzuführen, dass die Temperatur im Innern des anfänglich kalten und anschließend aufgeheizten Tropfens geringer als die des anfänglich warmen Tropfens ist, was einen langsameren Anstieg der Oberflächentemperatur verursacht. Der schnellere Anstieg der Oberflächentemperatur des “warmen“ Tropfens resultiert auch in einer früheren Zündung des Tropfens. Für höhere anfängliche Tropfentemperaturen (z. B.  $T_D(0) = 350\text{ K}$ ) ergibt sich ein anderes Bild. Durch die hohe Initialisierungstemperatur ist der verdunstende Massenstrom so hoch, dass aufgrund der Verdampfungsenthalpie die Temperatur an der Tropfenoberfläche zunächst sinkt. Nach dieser anfänglichen Absenkung steigt die Temperatur analog zu anderen Fällen infolge der (aufgrund von Wärmeleitung) zum Tropfen transportierten Wärme. Die Zündverzugszeit ist jedoch in diesem Fall nicht um die volle Dauer der Aufheizphase verkürzt (erkennbar an der Verschiebung des steilen Temperaturanstiegs nach rechts in Abbildung 4.21). Diese Verzögerung kommt dadurch zustande, dass nicht nur der Verdunstungsvorgang sondern auch physikalische Transportprozesse in der Gasphase für den Zündverzug verantwortlich sind. Dieser Umstand äußert sich auch in der Abnahme der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der anfänglichen Tropfentemperatur für steigende Tropfentemperaturen.

Im folgenden wird die Temperaturhistorie des Tropfens im Detail betrachtet. Dies erlaubt eine Beurteilung der Quasistationarität des Abbrands des Brennstofftropfens. In Abbildung 4.22 sind dazu die Korrelationen der Oberflächentemperatur und der Temperatur im Zentrum des Tropfens mit dem Tropfenradius aufgetragen.



**Abbildung 4.22:** Korrelationen der Oberflächentemperatur (links) und der Temperatur im Zentrum des Tropfens (rechts) mit dem Tropfenradius (Methanol,  $p = 8\text{ bar}$ ,  $T_g = 1000\text{ K}$ )

Die Abbildung zeigt die Korrelationen von vier Fällen mit unterschiedlichen Umgebungsbedingungen, wovon zwei Fälle eine niedrige anfängliche Tropfentemperatur ( $T_D(0) = 320\text{ K}$ ) und zwei Fälle eine hohe Anfangstemperatur ( $T_D(0) = 380\text{ K}$ ) aufweisen. Des weiteren

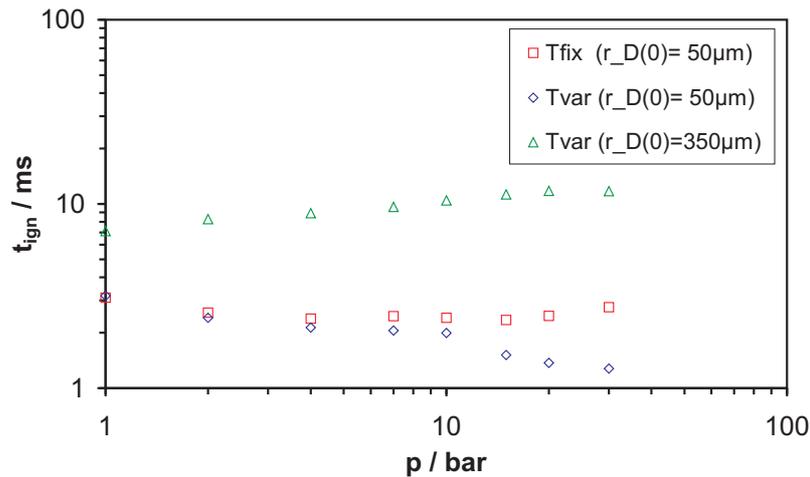
unterscheiden sich die beiden Fälle jeweils im Anfangsradius ( $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ). Aufgrund der Abnahme des Tropfenradius während des Abbrands verläuft die zeitliche Evolution von rechts nach links. Die Korrelation der Oberflächentemperatur lässt sich in zwei Bereiche aufteilen. Zu Beginn (geringe Temperatur, großer Radius) findet die transiente Aufheizung des Tropfens und anschließend dessen Selbstzündung statt. Der Abbrand des Tropfens erfolgt hingegen bei nahezu identischen Oberflächentemperaturen für alle vier Fälle. Dabei spielt die transiente Vorgeschichte des Tropfens eine untergeordnete Rolle. Vielmehr ist der momentane Tropfenradius entscheidend für die herrschende Oberflächentemperatur. Doch auch diese ändert sich im gezeigten Beispiel lediglich um 5 K. Diese weitere Temperaturerhöhung kann auf die sich zeitlich ändernde Temperaturverteilung im Tropfen zurückgeführt werden. Sie kann im Gegensatz zur transienten Aufheizphase jedoch als gering betrachtet werden.

Ein gänzlich anderes Bild ergibt sich für die Temperatur im Zentrum des Tropfens, wie man auf der rechten Seite von Abbildung 4.22 erkennen kann. Da sich die Auswirkungen der an der Oberfläche stattfindenden Erwärmung in der transienten Aufheiz- und Zündungsphase zeitverzögert im Tropfenzentrum bemerkbar machen, lässt sich die Evolution der Temperatur im Tropfenzentrum nicht in eine transiente und eine quasistationäre Phase aufteilen. Die zeitliche Verzögerung ist dabei durch die begrenzte Geschwindigkeit der Wärmeleitung in der flüssigen Phase begründet. Dennoch besteht die Möglichkeit einer quasistationären Beschreibung des Verdunstungs- bzw. Abbrandverhaltens des Tropfens, da für das Verdunstungsverhalten des Tropfens vornehmlich der lokale Zustand an der Oberfläche maßgebend ist.

## 4.7 Einfluss des Drucks auf den Zündprozess

In den unterschiedlichen technischen Einsatzfeldern der Sprayverbrennung, wie z. B. in Gasturbinen oder direkteinspritzenden Verbrennungsmotoren, findet die Zündung und Verbrennung von Kraftstofftropfen bei verschiedenen äußeren Drücken statt. Dabei soll eine unerwünschte Selbstzündung der Kraftstofftropfen ausgeschlossen werden. Um die Möglichkeiten der Beurteilung der Gefahr einer Selbstzündung zu verbessern, wird in diesem Abschnitt der Einfluss des Drucks auf die Zündverzugszeit eines Einzeltropfens untersucht. Diese Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Druck stellt sich sehr komplex dar, da die verschiedenen, den Zündverzug beeinflussenden, Detailprozesse unterschiedliche Druckabhängigkeiten aufweisen. Während die Siedetemperatur des Brennstoffs mit steigendem Druck ansteigt und somit unter Umständen, z. B. bei gleicher anfänglicher Tropfentemperatur, eine längere Aufheizphase zur Folge hat, sinkt der Wert der spezifischen Verdampfungsenthalpie mit steigendem Druck, was den Verdunstungsprozess beschleunigt. Des Weiteren werden die physikalischen Transportprozesse i. a. mit steigendem Druck verlangsamt ( $D \propto 1/p$  [12, 138]), wohingegen die chemische Kinetik beschleunigt wird [43, 138]. Die Druckabhängigkeit der

Zündverzugszeit eines Einzeltropfens setzt sich schließlich aus den unterschiedlichen Druckabhängigkeiten der verschiedenen Teilprozesse zusammen, abhängig davon, welcher dieser Teilprozesse im untersuchten Fall zeitlimitierend für den Zündprozess ist. Kang und Baek beschreiben ebenfalls die Komplexität der Druckabhängigkeit der Zündverzugszeit [55], wobei sie lediglich auf die Druckabhängigkeiten der Massendiffusion und der Verdampfungsenthalpie eingehen.



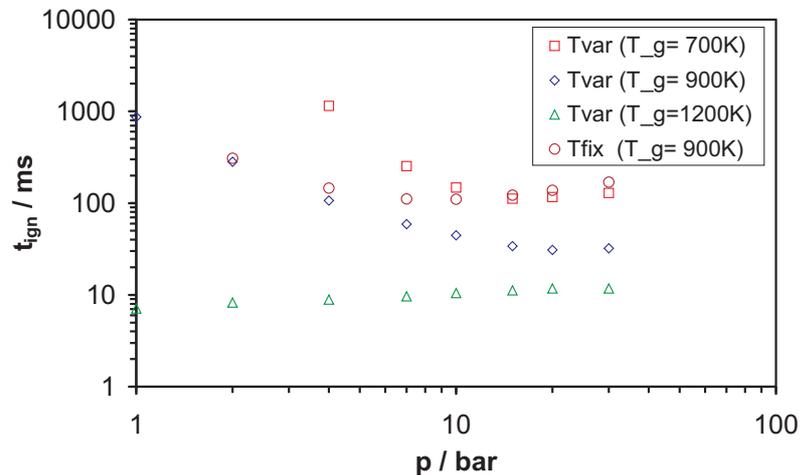
**Abbildung 4.23:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Umgebungsdruck (n-Heptan,  $T_g = 1200$  K)

Dass bei einer Variation bestimmter Parameter unterschiedliche Teilprozesse zeitlimitierend sein können, illustriert Abbildung 4.23.  $T_{\text{fix}}$  bezeichnet dabei Ergebnisse bei denen eine fixe, d. h. für jeden Druck gleiche, Anfangstemperatur des Tropfens von  $T_D(0) = 320$  K gewählt wurde. Dabei gilt es zu beachten, dass durch die Erhöhung des äußeren Drucks auch die Siedetemperatur des Tropfens erheblich ansteigt. Dies hat eine Verlängerung der Zündverzugszeit aufgrund der Verlängerung der Aufheizphase des Tropfens zur Folge (siehe Abschnitt 4.6). Da auch der Einfluss des äußeren Drucks ohne eine Verlängerung der Aufheizphase untersucht werden soll, wurden auch Simulationen durchgeführt, bei denen die Anfangstemperatur des Tropfens mit ansteigendem Druck erhöht wird ( $T_{\text{var}}$ ), so dass das Verhältnis von Sättigungsdampfdruck zu Umgebungsdruck konstant bleibt.

$$x_{\text{sat}} = \frac{p_{\text{sat}}(T_D)}{p_{\text{amb}}} = \text{const.} \quad (4.5)$$

In diesem Fall nimmt die Bedeutung der chemischen Kinetik als geschwindigkeitsbestimmender Faktor zu. Dieser Effekt lässt sich deutlich in Abbildung 4.23 erkennen. Während für die fixe Anfangstemperatur und einem Tropfenradius von  $50 \mu\text{m}$  die Zündverzugszeit bei der Variation des Umgebungsdrucks nahezu konstant bleibt, sinkt die Zündverzugszeit für die variable Anfangstemperatur mit steigendem Druck erkennbar ab. Aufgrund der Ge-

währleistung eines konstanten anfänglichen Sättigungsmolenbruchs  $x_{\text{sat}}$  ist die eigentliche Dominanz der physikalischen Transportprozesse als geschwindigkeitsbestimmender Faktor des Zündverzugs stark abgeschwächt. Somit wird der beschleunigende Einfluss des Drucks auf die chemische Kinetik in den Resultaten sichtbar. Im Fall der fixen Anfangstemperatur sind hingegen die physikalischen Transportprozesse der zeitlimitierende Faktor, was eine nahezu völlige Verschleierung der beschleunigten chemischen Kinetik bei erhöhtem Umgebungsdruck zur Folge hat. Für höhere Drücke ( $> 10$  bar) ist sogar ein Anstieg der Zündverzugszeit mit dem Druck zu erkennen. Wird der Tropfenradius erhöht ( $r_D(0) = 350 \mu\text{m}$ ), verstärkt sich die Dominanz der physikalischen Transportprozesse aufgrund der Vergrößerung der typischen Längenskalen (siehe Abschnitt 4.4). Somit lässt sich sogar bei konstantem Sättigungsmolenbruch  $x_{\text{sat}}$  eine Verlangsamung des Zündprozesses mit ansteigendem Druck beobachten.



**Abbildung 4.24:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Druck bei verschiedenen Gastemperaturen (n-Heptan,  $r_D(0) = 350 \mu\text{m}$ )

Dieses Verhalten ändert sich gänzlich beim Übergang zu geringeren Gastemperaturen, wie Abbildung 4.24 zeigt. Bei sinkender Gastemperatur verringert sich auch die Damköhlerzahl (siehe Abschnitt 4.4). Aufgrund der sich erheblich verzögerten chemischen Kinetik nimmt deren Einfluss auf die Zündverzugszeit als zeitlimitierende Größe zu. Mit abnehmender Gastemperatur gleicht sich die Druckabhängigkeit der Zündverzugszeit eines Einzeltropfens somit zunehmend der Druckabhängigkeit der Zündverzugszeit eines homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches an. In Abbildung 4.24 ist diese Entwicklung deutlich zu erkennen. Je geringer die Gastemperatur ist, desto stärker ist die Verkürzung der Zündverzugszeit mit steigendem Druck. Da sich der physikalische Transport mit steigendem Druck verlangsamt, die chemische Kinetik hingegen beschleunigt wird, nimmt die Damköhlerzahl mit steigendem Druck zu. Somit wird der physikalische Transport bei höheren Drücken erneut geschwindigkeitsbestimmend für den Zündverzug. Dieses Verhalten wird durch die Druck-

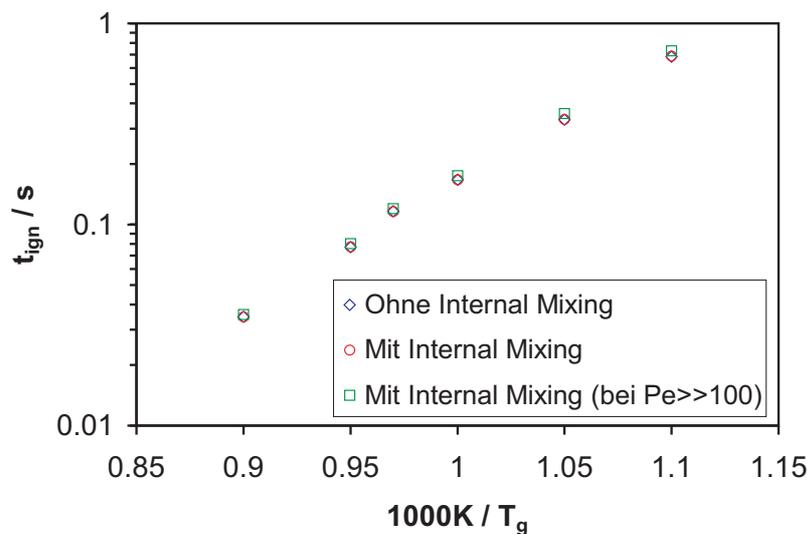
abhängigkeit der Zündverzugszeiten bei einer Gastemperatur von 700 K verdeutlicht. Bei niederen Drücken ( $p \leq 10$  bar) verringert sich die Zündverzugszeit mit steigendem Druck, wohingegen bei höheren Drücken die Zündverzugszeit mit dem Druck anwächst. Anhand der Zündverzugszeiten bei einer Gastemperatur von 900 K lässt sich der zusätzliche Einfluss der Aufheizphase auf die Zündverzugszeit beobachten. Aufgrund der mit dem Umgebungsdruck ansteigenden Siedetemperatur des Tropfens nimmt die Dauer der Aufheizphase und somit ihr Beitrag zur Zündverzugszeit kontinuierlich zu, wie Abbildung 4.24 zeigt. Dies führt ebenfalls zu einem deutlichen Anstieg der Zündverzugszeit bei höheren Drücken ( $p > 10$  bar). Sowohl Kang und Baek [55] als auch Schnaubelt [106] weisen auf die verschiedenen Detailprozesse und deren Einflüsse auf die Druckabhängigkeit hin. Kang und Baek untersuchen die Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom äußeren Druck in einem Bereich relativ niedriger Damköhlerzahlen, da die Gastemperatur ( $T_g \leq 1000$  K) recht gering gewählt wurde. Folglich stellen Kang und Baek eine kontinuierliche Verkürzung der Zündverzugszeit mit steigendem Druck fest. Für hohe Drücke unterscheiden sich dabei die Ergebnisse von Kang und Baek von den hier präsentierten Resultaten. Diese Unterschiede werden auf eventuell unterschiedliche anfängliche Tropfentemperaturen sowie auf die bei Kang und Baek realisierte Berücksichtigung von Realgaseffekten zurückgeführt. Auch bei den von Tsukamoto et al. präsentierten Resultaten [133] wurden vergleichbare Umgebungsbedingungen realisiert und Realgaseffekte berücksichtigt. Somit wurde eine analoge Druckabhängigkeit festgestellt. Bei Schnaubelt [106] wurden ebenfalls Umgebungstemperaturen realisiert, die einer recht geringen Damköhlerzahl entsprechen. Dort wird jedoch nicht die totale, sondern die erste und zweite Zündverzugszeit (aus denen sich die totale Zündverzugszeit zusammensetzt) analysiert. Der Einfluss des Drucks auf die physikalischen und chemischen Teilprozesse ist anhand dieser Analyse gut zu erkennen. Auch Schnaubelt stellt eine Verzögerung des (ersten) Zündverzugs durch die physikalischen Prozesse und eine Beschleunigung des (zweiten) Zündverzugs durch die chemische Kinetik bei steigendem Druck fest. Da auch bei Schnaubelt Realgaseffekte berücksichtigt werden, ist eine zukünftige Modellierung und Implementierung dieser Effekte in die vorhandenen Simulationstools sicher ratsam. Es ist jedoch zu beachten, dass der Einfluss dieser Effekte bei niedrigeren Drücken ( $p < 10$  bar) als gering anzusehen ist. Zu diesem Schluss gelangen auch Cuoci et al. [25].

## 4.8 Einfluss der inneren Zirkulation auf den Zündprozess

Aufgrund der in Abschnitt 3.3 erläuterten Ursachen kann selbst unter Mikrogravitation Zirkulation bzw. Konvektion innerhalb des Tropfens auftreten. Um die Auswirkungen der inneren Zirkulation zu berücksichtigen, werden die Transportkoeffizienten  $\lambda$  und  $D$  der flüssigen Phase mit einem Faktor  $\chi$  multipliziert. Man spricht dann von “effektiven“ Trans-

portkoeffizienten. Der Faktor  $\chi$  lässt sich dabei nach Abramzon und Sirignano [1] aus der Pecletzahl der flüssigen Phase berechnen. Der Einfluss dieses “effective conductivity models“ auf den Zündprozess wird im folgenden untersucht.

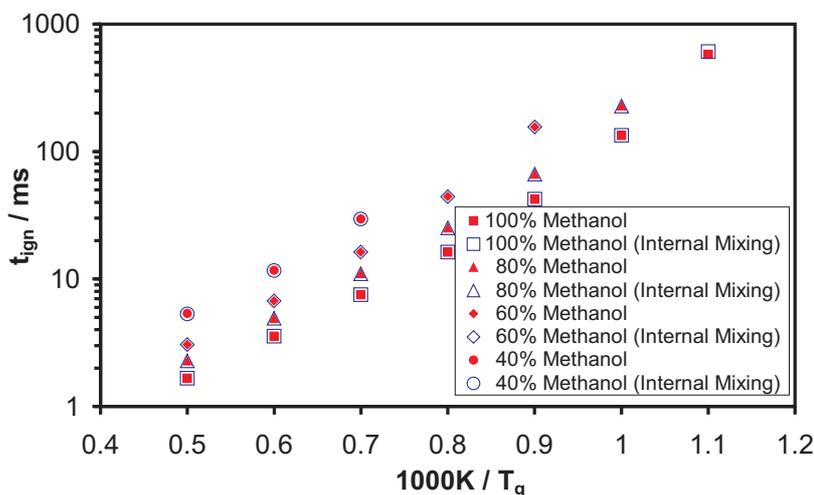
Dazu wurden die Zündverzugszeiten von selbstzündenden Heptantropfen bei Gastemperaturen um die 1000 K analog zu den Umgebungsbedingungen in Abbildung 4.4 bestimmt. Die Simulationen wurden sowohl unter Berücksichtigung der inneren Zirkulation als auch unter der Annahme, dass keine innere Zirkulation auftritt und somit die Transportkoeffizienten der flüssigen Phase nicht modifiziert werden, durchgeführt.



**Abbildung 4.25:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von innerer Zirkulation (n-Heptan,  $p = 1.01$  bar,  $r_D(0) = 660 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 298$  K)

In Abbildung 4.25 sind die erhaltenen Zündverzugszeiten dargestellt. Wie man erkennen kann, ist der Unterschied der Zündverzugszeiten mit und ohne Berücksichtigung der inneren Zirkulation marginal. Dieses Verhalten wird durch den geringen Wert der flüssigen Pecletzahl während des gesamten Verbrennungsprozesses begründet. Wird die flüssige Pecletzahl nach (3.39) berechnet, übersteigt die flüssige Pecletzahl den Wert 5 während des gesamten Abbrand des Tropfens nicht. Dabei weist die Pecletzahl in der Phase vor der Zündung des Tropfens, die für die Zündverzugszeit entscheidend ist, aufgrund der geringeren Brennkonzstante  $K$  sogar noch einen deutlich geringeren Wert auf. Zum Vergleich sind in Abbildung 4.25 die Zündverzugszeiten unter der Annahme einer Pecletzahl der flüssigen Phase von  $Pe^l \gg 100$  und somit des maximalen Wertes von  $\chi = 2.72$  ergänzt. Selbst unter der Annahme großer flüssiger Pecletzahlen kann die Auswirkung auf die resultierenden Zündverzugszeiten im Vergleich zu den analysierten Einflüssen der verschiedenen Umgebungsparameter als unwesentlich angesehen werden. Um die Frage der Allgemeingültigkeit dieser Aussage zu klären, wurde der Einfluss der inneren Zirkulation auf den Zündprozess für weitere Brennstoffe untersucht. Dabei konnte für Multikomponenten-Tropfen bestehend

aus Methanol und Wasser bzw. Ethanol und Wasser<sup>8</sup> ebenfalls kein signifikanter Einfluss der inneren Zirkulation auf die Zündverzugszeit festgestellt werden [34]. Abbildung 4.26 zeigt den geringen Einfluss der inneren Zirkulation am Beispiel der Methanol/Wassertropfen.



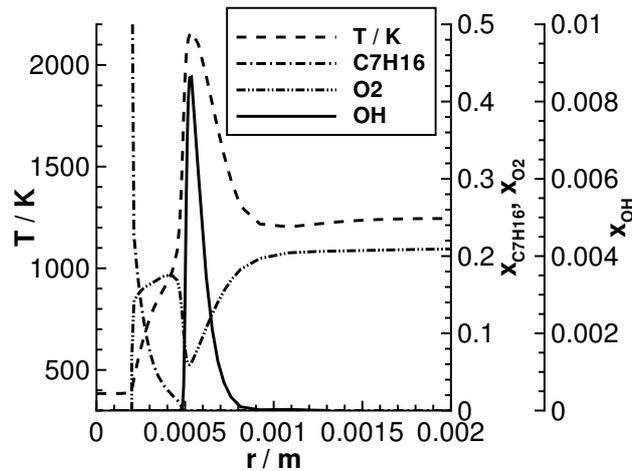
**Abbildung 4.26:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von Methanol/Wassertropfen von der Gas-temperatur mit und ohne Berücksichtigung von innerer Zirkulation ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342$  K)

Cuoci et al. [25] stellen ebenfalls keine signifikante Verbesserung der Resultate unter Berücksichtigung der inneren Zirkulation fest. Es ist jedoch nicht auszuschließen, dass die Berücksichtigung der inneren Zirkulation bei bestimmten Umgebungsbedingungen einen signifikanten Einfluss auf den Verbrennungsprozess bzw. das Abbrandverhalten von Einzeltropfen hat. Aus diesem Grund wird in Abschnitt 5.2 der Einfluss der Transportkoeffizienten der flüssigen Phase auf den Zünd- und Verbrennungsprozess anhand von n-Heptan/iso-Oktantropfen untersucht.

## 4.9 Untersuchung des lokalen Zustands am Zündort

Detaillierte Simulationen ermöglichen einen tieferen Einblick in die Vorgänge und Strukturen, die während des Zündprozesses auftreten. Die Analyse dieser Vorgänge und Strukturen hilft, das Verständnis der bei der Zündung eines Einzeltropfens auftretenden physikalischen und chemischen Prozesse, wie Diffusion, Wärmeleitung und chemische Kinetik, und deren Wechselwirkung zu verbessern. Aus diesem Grund wird hier der lokale Zustand am Zündort und dessen Veränderung bei Variation der Umgebungsbedingungen analysiert. Dabei liegt der Fokus auf dem lokalen Äquivalenzverhältnis bzw. der Luftzahl sowie dem Zündradius.

<sup>8</sup>Die Zündung und Verbrennung von Multikomponenten-Tropfen wird zwar erst in Kapitel 5 untersucht, jedoch sollen hier bereits Resultate der Modellierung von Multikomponenten-Tropfen zur Klärung des Einflusses der inneren Zirkulation auf den Zündprozess präsentiert werden.

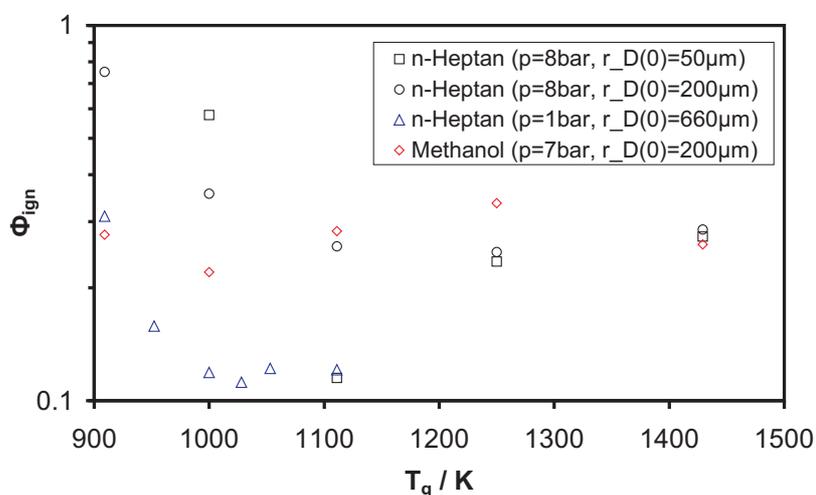


**Abbildung 4.27:** Radiale Profile der Temperatur sowie der Molenbrüche von n-Heptan, Sauerstoff und OH während der Zündung (n-Heptan,  $p = 8$  bar,  $T_g = 1250$  K,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 384$  K,  $t = 4.274$  ms)

Zunächst wird jedoch die generelle Situation bei einer einstufigen Zündung illustriert. Abbildung 4.27 zeigt die typischen räumlichen Profile der Temperatur sowie diverser Spezies während der Zündung [74, 80, 129]. Der Ort der Zündung ist deutlich am Maximum der Temperatur, das mit dem Maximum des OH-Profiles übereinstimmt, zu erkennen. Außerhalb dieser Reaktionszone befindet sich zum Zeitpunkt der Zündung nahezu ausschließlich Luft, wie am Verlauf des Sauerstoffprofils zu erkennen ist. Zwischen der Tropfenoberfläche und der Reaktionszone ist aufgrund der Verdunstung des flüssigen Brennstoffs und der anschließenden Diffusion in der Gasphase zusätzlich zur Luft eine beachtliche Menge an gasförmigem n-Heptan vorhanden. Aufgrund der Ausdünnung des Brennstoffs mit dem Radius, der Diffusion sowie des Verbrauchs des n-Heptans durch chemische Reaktionen sinkt das Profil des n-Heptans zur Reaktionszone hin stark ab. Die Vertiefung im Profil des Sauerstoffs verdeutlicht zudem den Sauerstoffverbrauch während des Zündprozesses [111]. Das lokale Äquivalenzverhältnis zum Zündzeitpunkt stellt einen wichtigen Aspekt der Analyse des Zündprozesses dar. Anhand des Äquivalenzverhältnisses lassen sich z. B. die dominierenden Umgebungsparameter sowie die charakteristischen Reaktionspfade bei der Zündung bestimmen. Des Weiteren ist es möglich, dass in einem selbstzündenden Spray die Zündung in mageren Bereichen initiiert wird, obwohl das globale Äquivalenzverhältnis eine fette Mischung zu erkennen gibt. Im folgenden wird die Änderung des Äquivalenzverhältnisses und des Zündradius bei der Variation verschiedener Umgebungsparameter untersucht und interpretiert. Der Startpunkt der Zündung ist dabei durch den Anstieg der lokalen Temperatur um mehr als 1 % der Umgebungstemperatur definiert. Da der Brennstoff zu diesem Zeitpunkt bereits mehrheitlich zerfallen ist, wird das lokale Äquivalenzverhältnis mittels der Elementzusammensetzung des Wasserstoffs, Kohlenstoffs und Sauerstoffs bestimmt.

Dabei treten mehrere Schwierigkeiten und Unsicherheiten in der Bestimmung des Äquivalenzverhältnisses und des Zündradius auf, die u. a. auf die in Abschnitt 4.1 beschriebenen Unzulänglichkeiten des Mechanismus sowie auf unterschiedliche Zeit- und Ortsauflösungen der Resultate aufgrund der selbstadaptiven zeitlichen und räumlichen Diskretisierung des Simulationstools zurückzuführen sind. Somit sind die in diesem Abschnitt präsentierten Resultate mit einem nicht zu vernachlässigendem Fehler behaftet. Dennoch eignen sie sich durchaus um qualitative Trends zu analysieren.

Zunächst wird der lokale Zustand bei der Zündung im transportbestimmten Regime für Gastemperaturen oberhalb 900 K untersucht. In Abbildung 4.28 sind die Äquivalenzverhältnisse der Zündung für die Brennstoffe n-Heptan und Methanol bei verschiedenen Gastemperaturen sowie unterschiedlichen Umgebungsdrücken und Tropfenradien dargestellt.

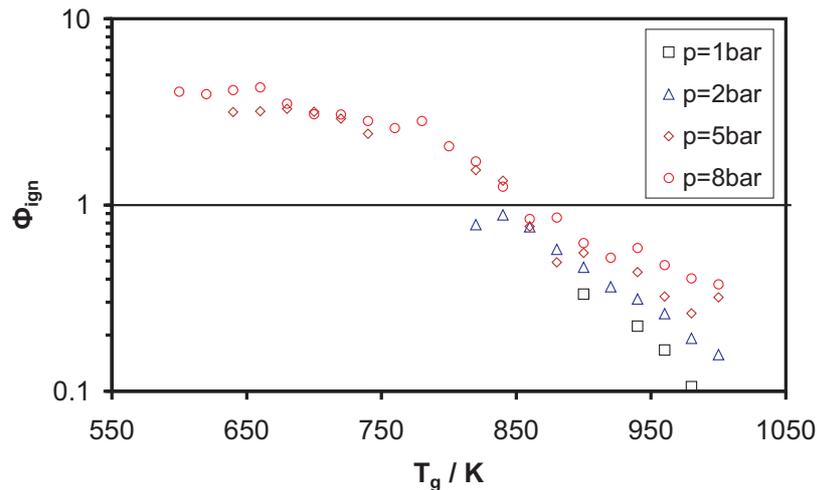


**Abbildung 4.28:** Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur bei der Zündung für n-Heptan und Methanol bei verschiedenen Umgebungsbedingungen

Wie man an der Skalierung der y-Achse erkennen kann, findet die Zündung in allen Fällen bei mageren Bedingungen statt. Aufgrund der räumlichen Inhomogenität kann dabei die Zündung auch in extrem mageren Bereichen ( $\Phi < 0.2$ ) initiiert werden. Aufgrund der in Abbildung 4.27 beschriebenen radialen Verteilung des Brennstoffs bei der Zündung sinkt das Äquivalenzverhältnis mit steigendem Radius. Da auch die Temperatur (vor dem Einsetzen der Zündung) mit steigendem Radius ansteigt, weist der Zustand des Zündorts zwar einen geringen Anteil an Brennstoff, jedoch eine hohe Temperatur auf. Somit kann die lokale Temperatur als die die Zündung bestimmende Größe identifiziert werden. Für den Brennstoff n-Heptan weisen die Resultate für steigende Gastemperaturen einen Trend hin zu geringeren Äquivalenzverhältnissen auf. Dieser Trend zeigt sich auch für Tropfen bestehend aus einer Mischung von n-Heptan und iso-Oktan [123].

Diese Feststellung führt zu der Frage, ob der Trend sich auch für Gastemperaturen unterhalb 900 K fortsetzt und ob es in diesem Temperaturbereich auch zur Zündung unter lokal

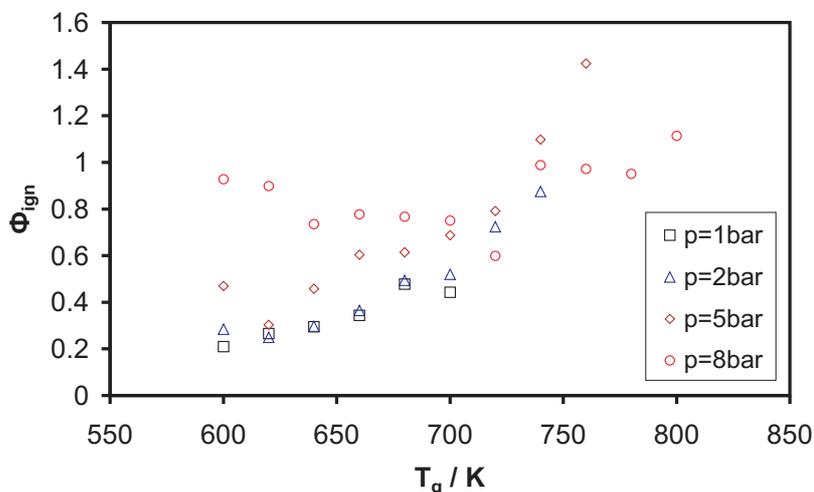
fetten Bedingungen kommen kann. Dazu wurden die Resultate der in Abschnitt 4.3 dargestellten Untersuchung der Zündmodi hinsichtlich des lokalen Zustands bei der Zündung analysiert [124]. Da in diesem Temperaturbereich auch mehrstufige Zündungen auftreten können (siehe Abschnitt 4.3), muss zwischen der Hochtemperatur- und der Niedertemperaturzündung unterschieden werden. Im folgenden wird daher zunächst der lokale Zustand bei der Hochtemperaturzündung untersucht.



**Abbildung 4.29:** Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur im Fall der Hochtemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan,  $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )

Abbildung 4.29 zeigt die Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur für die Hochtemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken. Es setzt sich deutlich der bereits bei höheren Gastemperaturen festgestellte Trend des steigenden Äquivalenzverhältnisses mit sinkender Umgebungstemperatur fort. Es ist zu beachten, dass es für Temperaturen unterhalb 820 K für Drücke kleiner gleich 2 bar zu keiner Hochtemperaturzündung kommt, da für diese Drücke und Temperaturen sich lediglich kalte Flammen bilden oder die Zündung komplett ausbleibt (siehe Abbildung 4.9). Besonders hervorzuheben ist der bei ca. 850 K stattfindende Wechsel des lokalen Zustands der Zündung von mageren zu fetten Bedingungen. Dies bedeutet, dass für diese niederen Gastemperaturen die Niedertemperaturzündung in Gebieten mit Brennstoffüberschuss initiiert wird. Auch für fette Zündbedingungen bleibt der Trend des steigenden Äquivalenzverhältnisses mit sinkender Gastemperatur erhalten. Vergleicht man Abbildung 4.29 mit Abbildung 4.9 fällt auf, dass der Wechsel der Zündbedingungen von mager zu fett mit dem Wechsel des Zündmodus von einstufiger zu zweistufiger Zündung übereinstimmt. Dies legt die Vermutung nahe, dass die zweite Stufe einer mehrstufigen Zündung nach der Etablierung einer kalten Flamme bei lokal fetten Äquivalenzverhältnissen ihren Ursprung hat. Unter Berücksichtigung der in Abschnitt 4.2, 4.4 und 4.5 erzielten Ergebnisse, die auf eine verstärkte Dominanz der chemischen Kinetik als zeitlimitierenden Faktor für den Zündverzug hinweisen, ist diese

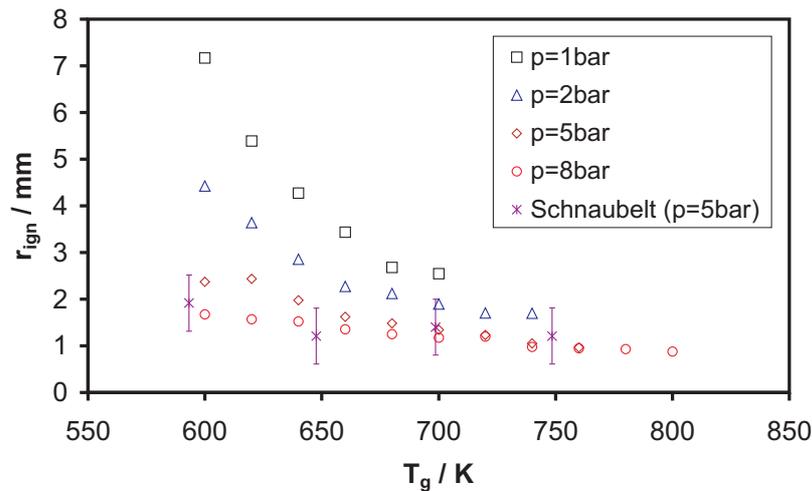
Konsequenz durchaus schlüssig, da für homogene Brennstoff/Luft-Gemische das Minimum des Zündverzugs ebenfalls bei fetten Mischungen liegt [19, 43].



**Abbildung 4.30:** Abhängigkeit des Äquivalenzverhältnisses von der Gastemperatur im Fall der Niedertemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan,  $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )

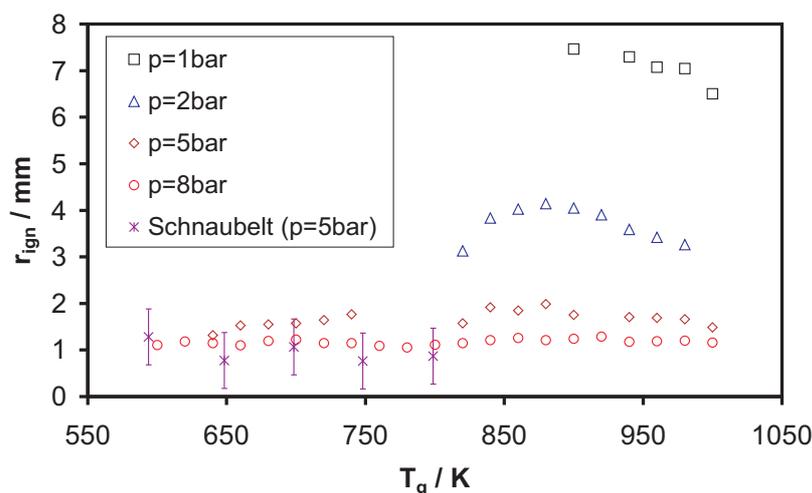
Ein völlig anderes Bild ergibt sich für den lokalen Zustand im Fall der Niedertemperaturzündung. Wie Abbildung 4.30 zeigt, findet die Zündung mehrheitlich unter mageren Bedingungen statt. Lediglich für höhere Umgebungstemperaturen ( $T_g \geq 740 \text{ K}$ ) lassen sich Zündungen in lokal fetten Bereichen beobachten. Des weiteren lässt sich für die Niedertemperaturzündung ein Trend von steigenden Äquivalenzverhältnissen bei steigender Gastemperatur erkennen. Die Zündung in vornehmlich mageren Gebieten deutet wiederum auf eine Dominanz der lokalen Temperatur als den die Zündung bestimmenden Parameter hin. Dieser Umstand steht im Gegensatz zu der nachfolgenden zweiten Stufe einer zweistufigen Zündung, bei der die chemische Kinetik den zeitlimitierenden Faktor darstellt. Das sinkende Äquivalenzverhältnis mit sinkender Gastemperatur kann hier damit erklärt werden, dass die Zündverzugszeit für ein homogenes Brennstoff/Luft-Gemisch für Temperaturen unterhalb des NTC-Bereichs erneut exponentiell mit der Temperatur ansteigt (siehe Abbildung 4.5, [43, 138]). Somit findet die Zündung bevorzugt an einem Ort mit einer höheren lokalen Temperatur, der weiter entfernt vom Tropfen liegt und dadurch ein geringeres lokales Äquivalenzverhältnis aufweist, statt. In dem in Abbildung 4.30 untersuchten Temperaturbereich verstärkt sich dieser Effekt mit sinkender Gastemperatur.

Die Schlussfolgerungen stimmen auch mit den Ergebnissen von Tanabe et al. [128] überein. Während der Zündverzug der ersten Stufe der zweistufigen Zündung hauptsächlich von physikalischen Parametern beeinflusst wird, zeigt die zweite Zündverzugszeit (“second induction time“), i. e. die Differenz aus totaler Zündverzugszeit und Zündverzugszeit der ersten Stufe, eine starke Abhängigkeit von der chemischen Kinetik, die sich in der Temperaturunabhängigkeit sowie der ausgeprägten Druckabhängigkeit im NTC-Bereich äußert.



**Abbildung 4.31:** Abhängigkeit des Zündradius von der Gastemperatur im Fall der Niedertemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan,  $d_D(0) = 700 \mu m$ )

Des weiteren werden die gezogenen Schlussfolgerungen durch die Analyse der Zündradien bestätigt. In Abbildung 4.31 wird der Anstieg des Zündradius mit sinkender Gastemperatur deutlich, der die getroffenen Aussagen erhärtet. Offensichtlich ist ebenfalls die Verringerung des Zündradius mit steigendem Umgebungsdruck, die durch die Druckabhängigkeit der Diffusionskoeffizienten ( $D \propto 1/p$  [12, 138]) verursacht wird. Die Zündradien der Hochtemperaturzündung weisen hinsichtlich der Druckabhängigkeit ein analoges Verhalten auf, wie Abbildung 4.32 zeigt.



**Abbildung 4.32:** Abhängigkeit des Zündradius von der Gastemperatur im Fall der Hochtemperaturzündung bei verschiedenen Umgebungsdrücken (n-Heptan,  $d_D(0) = 700 \mu m$ )

Vergleicht man die Zündradien der Nieder- und der Hochtemperaturzündung, stellt man fest, dass die Zündradien vergleichbare Werte aufweisen. Im Fall der zweistufigen Zündung

für Gastemperaturen unterhalb 680 K weisen die Zündradien der ersten Stufe der Zündung sogar höhere Werte auf. Es ist dabei zu beachten, dass selbst für den Fall, dass beide Stufen bei gleichem Radius stattfinden, das Äquivalenzverhältnis der zweiten Stufe höher ist, da die Hochtemperaturzündung später stattfindet und somit die Diffusion des Brennstoffs in die Gasphase bereits weiter fortgeschritten ist. Somit wird erneut das höhere Äquivalenzverhältnis der Hochtemperaturzündung sichtbar.

In den Abbildungen 4.31 und 4.32 sind ebenfalls die experimentell bestimmten Zündradien von Schnaubelt [106] für den Umgebungsdruck von  $p = 5$  bar eingezeichnet. Angesichts der beschriebenen Schwierigkeiten in der Bestimmung des Zündradius sowie dem von Schnaubelt beschriebenen, mit der experimentellen Bestimmung der Zündradien verbundenen Fehler kann die Übereinstimmung der numerischen und experimentellen Werte als zufriedenstellend angesehen werden.

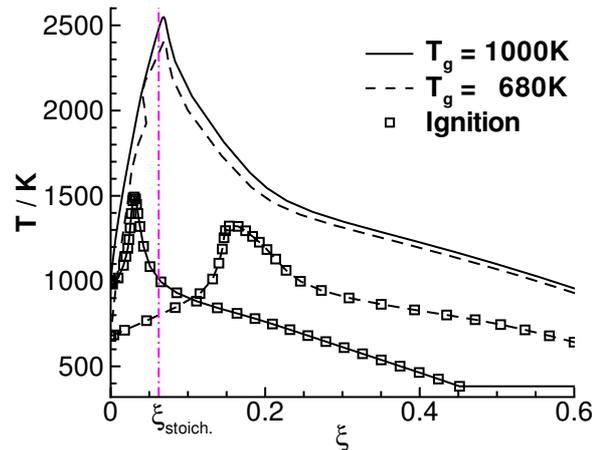
Zusammenfassend untermauert die Analyse der lokalen Zustände und der Radien der Zündung die in den vorherigen Abschnitten gezogenen Schlussfolgerungen, dass ausgehend von heißen Gastemperaturen ( $T_g \geq 1000$  K) bei sinkender Gastemperatur die Bedeutung der physikalischen Transportvorgänge als für die Zündung geschwindigkeitsbestimmender Faktor abnimmt, und zunehmend der Einfluss der chemischen Kinetik den Zündverzug dominiert. Dieser Wechsel des den Zündverzug bestimmenden Mechanismus äußert sich auch in der Analyse der lokalen Gemischzusammensetzung am Zündort.

Auch wenn die Zündung für verschiedene Umgebungsbedingungen bei recht unterschiedlichen lokalen Äquivalenzverhältnissen stattfindet, ist die Reaktionszone der sich anschließend etablierenden, den Tropfen einhüllenden Flamme in der Nähe der stöchiometrischen Zusammensetzung zu erwarten, da es sich um eine laminare nicht-vorgemischte Flamme handelt [111]. Somit ist ein ähnliches Verhalten der brennenden Flammen bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen, unabhängig von den lokalen Bedingungen am Zündort, zu erwarten. Zur Untersuchung des Verhaltens der brennenden Flamme ist die Analyse der radialen Profile aufgrund der unterschiedlichen Tropfenradien bei der Zündung sowie der fortschreitenden Reduktion des Tropfenradius während des Abbrands weniger gut geeignet. Da es sich bei der den Tropfen einhüllenden Flamme um eine laminare nicht-vorgemischte Flamme handelt, empfiehlt sich die Analyse der Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch. Hierzu wird der Mischungsbruch des Stickstoffs  $\xi_N$  definiert als [138]

$$\xi_N = \frac{w(N) - w_{\text{air}}(N)}{w_{\text{fuel}}(N) - w_{\text{air}}(N)} \quad , \quad (4.6)$$

wobei  $w(N)$  den Massenbruch des Elements Stickstoff bezeichnet. Die Indizes air und fuel repräsentieren dabei die Umgebungsluft sowie den Brennstoff, aus dem der Tropfen besteht. Sind die Diffusionskoeffizienten der beteiligten chemischen Spezies gleich (was von einigen Ausnahmen abgesehen näherungsweise erfüllt ist), so ist der in dieser Weise definierte Mischungsbruch unabhängig von der Wahl des Elements. Unter diesen Voraussetzungen entspricht also der Mischungsbruch des Stickstoffs den Mischungsbrüchen der anderen be-

teiligten chemischen Elemente, wie z. B. Kohlenstoff oder Sauerstoff, und wird deshalb im folgenden lediglich mit  $\xi$  bezeichnet. Ein Wert von  $\xi = 0$  entspricht nach (4.6) der den Tropfen umgebenden Luft, wohingegen  $\xi = 1$  eine "Mischung" bestehend aus reinem Brennstoff repräsentiert.



**Abbildung 4.33:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch für zwei verschiedene Gastemperaturen (n-Heptan,  $p = 8$  bar,  $d_D(0) = 700 \mu\text{m}$ )

In Abbildung 4.33 ist die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch für zwei verschiedene Gastemperaturen der Umgebungsluft dargestellt. Die Abbildung zeigt dabei jeweils die Temperaturprofile während der Zündung (durch  $\square$  gekennzeichnet) sowie die Temperaturprofile der brennenden Flamme. Die strichpunktierte Linie kennzeichnet den stöchiometrischen Mischungsbruch  $\xi_{\text{stoich.}} = 0.062$ . An den Temperaturprofilen während der Zündung werden erneut die unterschiedlichen Mischungsverhältnisse bei der Zündung abhängig von der Umgebungstemperatur bzw. dem Zündmodus deutlich. Während für hohe Gastemperaturen ( $T_g = 1000$  K) die Zündung unter mageren Bedingungen (links der stöchiometrischen Linie) stattfindet, kommt es für niedrigere Gastemperaturen ( $T_g = 680$  K) unter lokal fetten Bedingungen (rechts der stöchiometrischen Linie) zur Zündung. Unabhängig von den lokalen Bedingungen am Zündort bildet sich jedoch anschließend die quasistationär brennende Flamme aus. Für beide Gastemperaturen liegt das Maximum der Temperatur nahezu am Punkt der stöchiometrischen Mischung. Beide Temperaturprofile weisen eine ähnliche Form auf. Die bestehenden Unterschiede sind zum einen auf die unterschiedlichen Gastemperaturen, die unterschiedlichen Werten für  $\xi = 0$  entsprechen, sowie unterschiedliche Flammentemperaturen zur Folge haben, zurückzuführen. Zum anderen unterscheiden sich aufgrund der unterschiedlichen Gastemperaturen, vor allem bei lokal mageren Zuständen, die Aktivitäten der einzelnen Reaktionspfade der chemischen Kinetik sowie die Interaktion der physikalischen und chemischen Teilprozesse, so dass eine völlige Übereinstimmung der Temperaturprofile unwahrscheinlich ist.

Schnaubelt beobachtet ebenfalls bei der Simulation von mehrstufigen Zündprozessen von n-Heptan- und n-Dekantropfen ein mageres Mischungsverhältnis am Ort der ersten Stufe der Zündung [106]. Die zweite Stufe der Zündung hingegen tritt unter lokal fetten Bedingungen auf. Für beide Zündungen stellt Schnaubelt eine anschließende Wanderung der Reaktionszone zum Ort der stöchiometrischen Gemischzusammensetzung fest. Die Resultate stehen somit im Einklang mit den hier erzielten Ergebnissen.

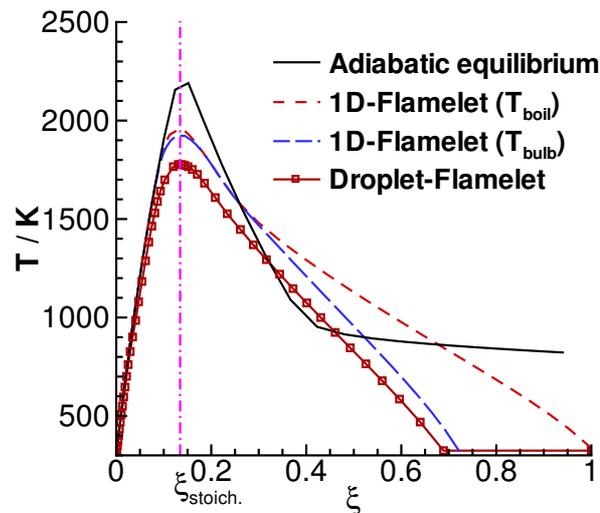
## 4.10 Einfluss von Umgebungsparametern auf die Flammenstruktur

Wie bereits in Abschnitt 4.9 erwähnt, wird der Tropfen bei seiner Verbrennung von einer sphärischen nicht-vorgemischten Flamme umgeben. Der Verbrennungsvorgang kann dabei als quasistationär angesehen werden. Dieser Umstand äußert sich in der zeitlichen Konstanz der Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch  $\xi$  während der Verbrennung des Tropfens. Eine zeitliche Konstanz der räumlichen Temperaturverteilung ist aufgrund der Reduktion des Tropfenradius nicht gegeben.

In diesem Abschnitt wird deshalb die Temperaturverteilung im Mischungsbruchraum im Fall der Tropfenverbrennung für verschiedene Umgebungsparameter aufgezeigt. Des Weiteren wird der Einfluss der Umgebungsparameter auf die Temperaturverteilung untersucht und diskutiert. Da unter bestimmten Voraussetzungen die Sprayverbrennung als ein Ensemble von Verbrennungsprozessen einzelner Tropfen angesehen werden kann, lassen sich (turbulente) Sprayflammen mit Hilfe dieser laminaren Einzelflämmchen (Flamelets) beschreiben [37, 47, 52, 91, 117, 138]. So können die hier gezeigten Resultate Eingang in die Simulation von turbulenten Sprayflammen finden, da die entwickelten Simulationstools die Erstellung von Flamelet-Bibliotheken ermöglichen. Um dabei auch dem die Tropfen umgebenden Strömungsfeld Rechnung zu tragen, wird in Abschnitt 6.5 der Einfluss einer äußeren Gasströmung bzw. der Relativgeschwindigkeit auf die Flammenstruktur analysiert.

Eine Alternative zu den Tropfen-Flamelets bei der Benutzung der Flamelet-Bibliotheken stellt die Verwendung von Flamelets dar, die mit Hilfe der Simulation einer Gegenstromanordnung erzeugt werden [47, 117], die als einfache Näherung zur Modellierung eines (angeströmten) brennenden Tropfens verwendet werden kann. Aus diesem Grund wird in diesem Abschnitt zunächst der Vergleich mit Flamelets angestellt, die aus eindimensionalen Simulationen der Gasphase erhalten werden. Dieser Vergleich wird anhand der beiden Brennstoffe Methanol und n-Heptan durchgeführt.

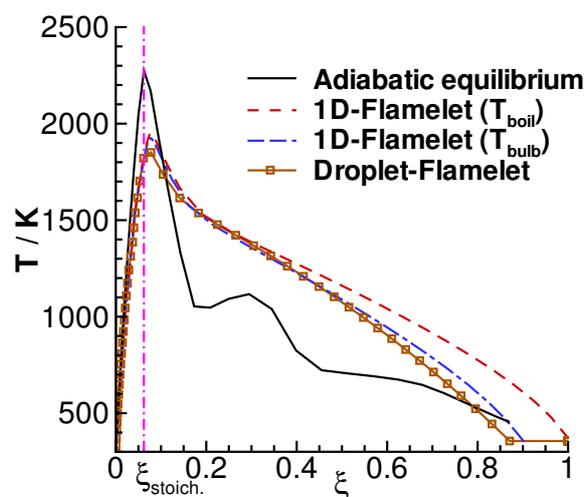
In Abbildung 4.34 ist die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch für einen brennenden Methanoltropfen dargestellt (Droplet-Flamelet). Die strichpunktierte Linie kennzeichnet den stöchiometrischen Mischungsbruch  $\xi_{\text{stoich.}} = 0.1345$ . Die Temperaturabhängigkeit zeigt den für eine laminare nicht-vorgemischte Flamme typischen Verlauf. Das Ma-



**Abbildung 4.34:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets ( $p = 1$  bar,  $T_g = 300$  K)

ximum der Temperatur befindet sich in der Nähe der stöchiometrischen Gemischzusammensetzung. Die umgebende Luft ( $\xi = 0$ ) hat eine Temperatur von 300 K. Es treten keine Zustände mit einem Mischungsbruch größer als 0.7 auf. Die Ursache dafür liegt in dem Umstand, dass im stationären Fall die Tropfentemperatur nicht der Siedetemperatur des Brennstoffs, sondern der Kühlgrenztemperatur des Methanols bei den vorherrschenden Umgebungsbedingungen entspricht. Diese Kühlgrenztemperatur liegt unterhalb der Siedetemperatur (siehe Abschnitt 4.6, [33, 59, 114, 140]), und somit gilt für den Molenbruch des gasförmigen Methanols an der Tropfenoberfläche  $x_{\text{CH}_3\text{OH}} < 1$ . Folglich stellt die Erzeugung von Flamelets für die Berechnung von Sprayflammen durch die ausschließliche Simulation einer Verbrennung in der Gasphase, bei der die Tropfenoberfläche, i. e. die Brennstoffseite, durch reinen Brennstoff an seinem Siedepunkt repräsentiert wird, lediglich eine erste Lösung dar, die jedoch weiteres Verbesserungspotential aufweist. Die Schwachstellen bzw. Fehler dieser Näherung (1D-Flamelet ( $T_{\text{boil}}$ )) sind in Abbildung 4.34 zu erkennen. Neben einer etwas zu hohen maximalen Flammentemperatur wird die lokale Temperatur auf der brennstoffreichen Seite ( $\xi > \xi_{\text{stoich.}}$ ) um bis zu 400 K überschätzt. Die Korrektur der Randbedingung der Simulation der Gegenstromflamme zu einem Zustand, dessen Temperatur die Kühlgrenztemperatur des Methanols beträgt und dessen Gemischzusammensetzung den daraus folgenden Werten für Brennstoff und Luft entspricht (1D-Flamelet ( $T_{\text{bulb}}$ )), verbessert die Approximation erheblich. Jedoch bleiben signifikante Unterschiede zu dem Tropfen-Flamelet bestehen. Die maximale Flammentemperatur wird weiterhin überschätzt und auch der Zustand an der Tropfenoberfläche wird nicht vollständig richtig repräsentiert, da das Gemisch dort nicht nur aus Brennstoff und Luft, sondern auch aus Abgas, i. e. hauptsächlich Kohlendioxid und Wasser, besteht. Ein weiterer Vorteil der Erzeugung der Flamelets

durch die Simulation eines brennenden Tropfens besteht darin, dass dieser Zustand an der Oberfläche bei der Simulation nicht vorgegeben werden muss, sondern ein Resultat der Simulation darstellt. Um den Aufwand der Erzeugung von Flamelet-Bibliotheken mittels detaillierter Simulationen zu vermeiden, lassen sich Näherungen annehmen, die zu einem funktionalen Zusammenhang zwischen der Temperatur und dem Mischungsbruch führen. Aufgrund der Resultate der vorherigen Abschnitte liefert die Annahme unendlich schneller Chemie mit vollständiger Umsetzung zu Kohlendioxid und Wasser [138] kein zuverlässiges Ergebnis. Eine andere Näherung stellt die Annahme dar, dass sich das System an jedem Punkt im Zustand des adiabatischen Gleichgewichts befindet. Zur Beurteilung dieser Annahme wurden diese Gleichgewichtszustände mit dem chemischen Gleichgewichtsprogramm GASEQ [81] berechnet. Wie man in Abbildung 4.34 anhand der schwarzen Linie der Gleichgewichtszustände erkennen kann, stellt diese Annahme eine äußerst unzureichende Näherung zur Modellierung der Tropfenverbrennung dar. Für große Werte des Mischungsbruchs ( $\xi > 0.5$ ) entspricht das adiabatische Gleichgewicht einer Dekomposition des Methanols zu  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$ , was zu einer äußerst schlechten Näherung der Zustände des zu beschreibenden Systems führt.



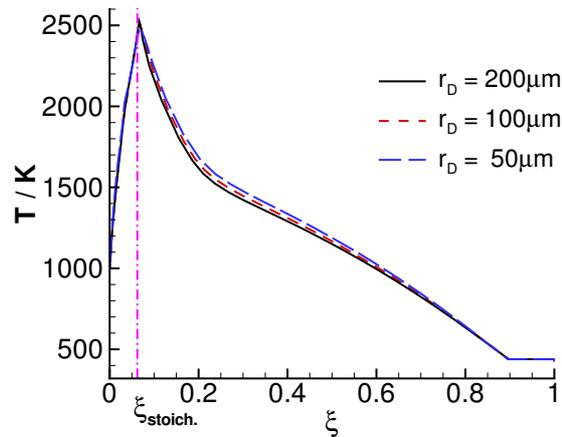
**Abbildung 4.35:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets ( $p = 1$  bar,  $T_g = 300$  K)

Abbildung 4.35 zeigt den Vergleich der durch die verschiedenen Methoden erzeugten Flamelets für den Fall des Brennstoffs n-Heptan. Auch für n-Heptan zeigen sich die gleichen qualitativen Unterschiede wie für Methanol. Die Linie der Gleichgewichtszustände stellt erneut eine unzureichende Näherung des Tropfen-Flamelets dar. Die maximale Flammentemperatur sowie die lokalen Temperaturen auf der brennstoffreichen Seite werden ebenfalls durch die ausschließliche Simulationen einer Verbrennung in der Gasphase (1D-Flamelet) überschätzt. Diese Überschätzung und der damit verbundene Fehler fällt jedoch im Fall

des n-Heptans etwas geringer aus, da zum einen die Flammentemperatur des n-Heptans die des Methanols übersteigt und zum anderen die spezifische Verdampfungsenthalpie des n-Heptans einen geringeren Wert als die spezifische Verdampfungsenthalpie des Methanols aufweist. Somit ist die Differenz von Siedetemperatur und Kühlgrenztemperatur im Fall des n-Heptans geringer, was einen höheren Wert des Molenbruchs des n-Heptans an der Tropfenoberfläche zur Folge hat. Da die Näherungen der 1D-Flamelets umso besser erfüllt sind, je näher der Molenbruch des n-Heptans an der Tropfenoberfläche bei  $x_{C_7H_{16}} = 1$  liegt, fallen die Unterschiede der 1D-Flamelets und des Tropfen-Flamelets für n-Heptan geringer aus.

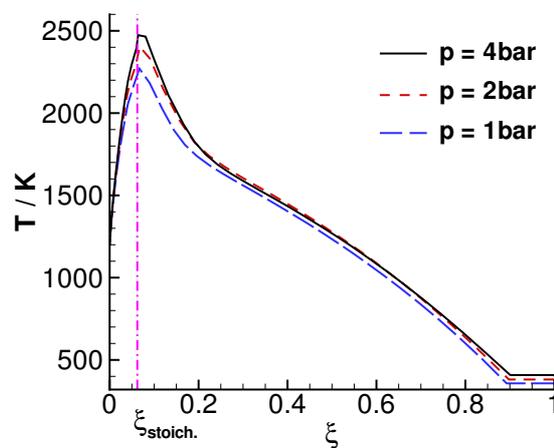
Im folgenden wird der Einfluss der verschiedenen Umgebungsparameter auf die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch bzw. die Flamelets aufgezeigt. Der Einfluss der verschiedenen Umgebungsparameter wird dabei anhand des Brennstoffs n-Heptan dargestellt. Der Brennstoff selbst verändert die Ausprägung der Flamelets natürlich am signifikantesten, wie man an Abbildung 4.34 und 4.35 erkennen kann, jedoch zeigen die verschiedenen Umgebungsparameter auf die Flamelets der unterschiedlichen Brennstoffe qualitativ die gleichen Auswirkungen. Wie sich schon bei der Untersuchung des Einflusses der Tropfentemperatur auf den Verbrennungsprozess feststellen ließ (siehe Abschnitt 4.6), spielt die transiente Vorgeschichte beim Abbrand des Tropfens in der Gasphase eine untergeordnete Rolle. Folglich zeigen auch hinsichtlich der Flamelets Initialisierungsparameter, wie die anfängliche Tropfentemperatur oder eine eventuelle Vorverdampfung des Brennstoffs, keine Auswirkungen. Vielmehr bestimmen andere Umgebungsparameter, wie Gastemperatur oder Druck, im Fall der Tropfentemperatur die Kühlgrenztemperatur, die sich während des Abbrands an der Oberfläche des Tropfens einstellt. Auch zeigt sowohl der anfängliche als auch der momentane Tropfenradius lediglich einen wesentlich geringeren Einfluss auf die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch als andere Umgebungsparameter. Ein derartiges Verhalten war zu erwarten, da sich die Kühlgrenztemperatur an der Tropfenoberfläche nach der Zündung relativ rasch einstellt und sich diese Oberflächentemperatur in der Folge, während des Abbrands des Tropfens nur marginal ändert, wie Abbildung 4.22 zeigt. Abbildung 4.36 verdeutlicht das beschriebene Verhalten. Die funktionalen Zusammenhänge von Temperatur und Mischungsbruch weisen bei nahezu gleichem momentanen Tropfenradius für drei unterschiedliche anfängliche Tropfenradien nur geringe Unterschiede auf.

Im Gegensatz zu den bisher untersuchten Umgebungsparametern zeigen Variationen der Gastemperatur und des Umgebungsdrucks deutliche Auswirkungen auf die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch. Der Einfluss der Gastemperatur auf den Temperaturverlauf ist dabei offensichtlich, da die Gastemperatur den Wert am linken Rand des Temperaturverlaufs (bei  $\xi = 0$ ) festlegt, da dieser Mischungsbruch den Zustand der Umgebungsluft beschreibt. Des weiteren folgt aus der Variation der Temperatur der Umgebungsluft eine Veränderung der Flammentemperatur, die wiederum eine Veränderung der



**Abbildung 4.36:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets für verschiedene anfängliche Tropfenradien ( $p = 8 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1000 \text{ K}$ )

Kühlgrenztemperatur des Tropfens, d. h. der Temperatur am rechten Rand (bei  $\xi = 1$ ), nach sich zieht.



**Abbildung 4.37:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines n-Heptan/Luft-Flamelets für verschiedene Umgebungsdrücke ( $T_g = 1200 \text{ K}$ )

Neben der Gastemperatur zeigt aber auch der Umgebungsdruck einen merklichen Einfluss auf die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch. Abbildung 4.37 zeigt diese Abhängigkeit für drei unterschiedliche Umgebungsdrücke. Aufgrund des steigenden Drucks verlagert sich das  $\text{CO}/\text{CO}_2$ -Gleichgewicht, dem Prinzip von Le Chatelier [82] folgend, hin zu höheren  $\text{CO}_2$ -Konzentrationen. Da Kohlendioxid  $\text{CO}_2$  im Vergleich zu Kohlenmonoxid  $\text{CO}$  eine niedrigere molare Enthalpie aufweist, folgt daraus der typische Anstieg der Flammentemperatur bei  $\xi = \xi_{\text{stoich.}}$  mit steigendem Druck. An der Tropfenoberfläche steigt die

Temperatur ebenfalls mit ansteigendem Druck, da die Siedetemperatur und folglich auch die Kühlgrenztemperatur des Brennstoffs mit steigendem Druck ansteigt. Im Vergleich zum Anstieg der Flammentemperatur kann dieser Anstieg jedoch als gering angesehen werden. Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass bei Kenntnis der Temperatur der Umgebungsluft sowie des Umgebungsdrucks die Erstellung von Flamelet-Bibliotheken für die Modellierung von (turbulenten) Sprayflammen möglich erscheint. Da bei der hier durchgeführten Untersuchung der Einfluss des (lokalen) Strömungsfelds auf die Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch noch nicht berücksichtigt wird, wird dieser Einfluss in Abschnitt 6.5 untersucht.

# Kapitel 5

## Modellierung der Zündung und Verbrennung von Multikomponenten-Tropfen

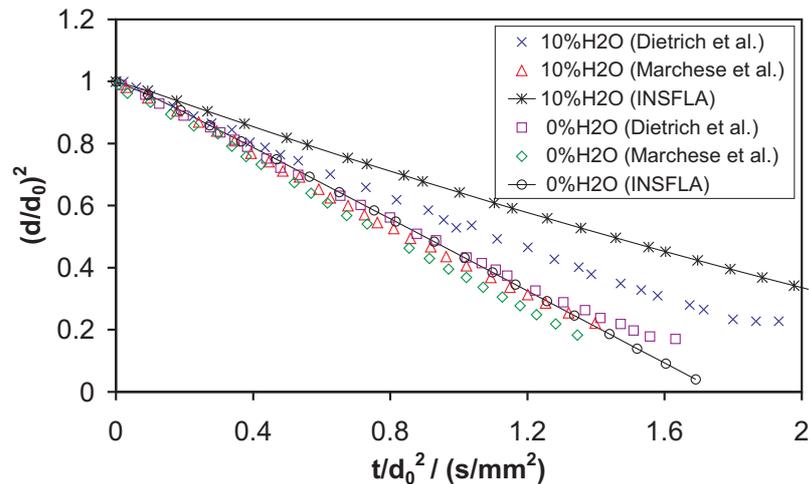
In technischen Systemen wie Verbrennungsmotoren und Gasturbinen handelt es sich bei den Brennstoffen (z. B. Benzin oder Kerosin) um Gemische, die sich aus einer Vielzahl von chemischen Spezies zusammensetzen. Auf dem Weg zu einer zuverlässigen Modellierung realitätsnaher Szenarien erfolgt deshalb hier der Übergang von der Simulation der Zündung und Verbrennung von Tropfen bestehend aus einer chemischen Spezies hin zu Multikomponenten-Tropfen bestehend aus mehreren chemischen Spezies. Es werden dabei Tropfen betrachtet, die sich aus Methanol bzw. Ethanol und Wasser zusammensetzen sowie Tropfen bestehend aus n-Heptan und iso-Oktan. Es wird insbesondere der Einfluss der Gemischzusammensetzung des Tropfens auf die charakteristischen Größen des Zünd- und Verbrennungsprozesses des Tropfens betrachtet. Des Weiteren wird die Abhängigkeit dieser Größen von stoffspezifischen Parametern des Phasenübergangs eines Mehrkomponenten-Tropfens analysiert. Zudem wird die Zuverlässigkeit von in der Simulation von Kraftstoff-sprays gebräuchlichen Modellen, wie dem "Thin skin model" oder dem "Uniform state model" [36], überprüft.

### 5.1 Zündung und Verbrennung von Alkohol/Wasser-tropfen

Aufgrund der begrenzten Kapazität fossiler Brennstoffe gewinnen regenerative Energieträger zunehmend an Bedeutung. Methanol und Ethanol stellen dabei zwei alternative Brennstoffe dar, die aus nachwachsenden Rohstoffen gewonnen werden können. Daraus resultiert die zunehmende Bedeutung dieser beiden Stoffe als Brennstoff [40,88,136]. In diesem Abschnitt wird die Zündung und Verbrennung von Methanol- bzw. Ethanoltropfen unter

Beimischung von Wasser untersucht.

Zunächst wird die Verbrennung eines Tropfens bestehend aus reinem Methanol und eines Tropfens bestehend aus 90 % Methanol und 10 % Wasser bei einer Umgebungstemperatur von 300 K und 1 bar simuliert. Abbildung 5.1 zeigt die zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers.

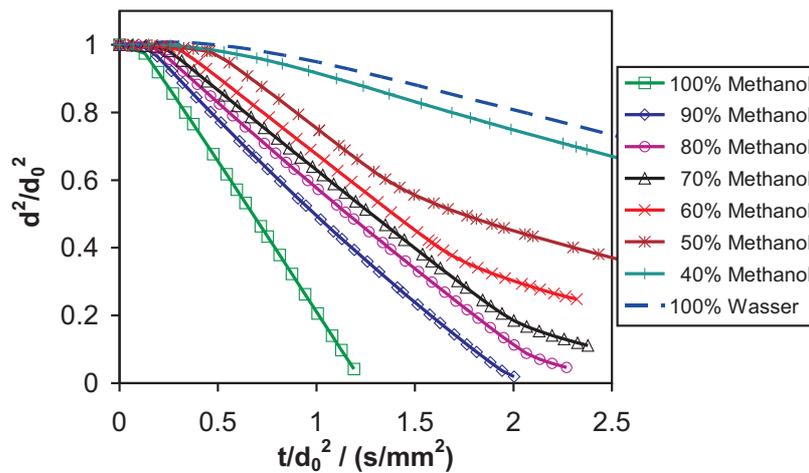


**Abbildung 5.1:** Zeitliche Evolution des Durchmessers eines reinen Methanoltropfens sowie mit einem Wassergehalt von 10 Massenprozent ( $p = 1$  bar,  $d_D(0) = 3$  mm,  $T_g = 300$  K,  $T_D(0) = 300$  K)

Der zeitliche Verlauf des Tropfendurchmessers wurde sowohl experimentell von Dietrich et al. [29] als auch numerisch von Marchese et al. [72, 73] sowie im Rahmen dieser Arbeit mit INSFLA bestimmt. In allen drei Fällen ist eine Abnahme der Brennkonzante  $K$  für den Fall der Beimischung von Wasser erkennbar. Die numerischen Simulationen von Marchese et al. überschätzen dabei in beiden Fällen die Brennkonzante, wohingegen die Resultate von INSFLA für den reinen Methanoltropfen sehr gut mit experimentellen Resultaten übereinstimmen. Für den Tropfen bestehend aus der Methanol/Wasser-Mischung wird die Brennkonzante jedoch unterschätzt. Nichtsdestotrotz werden die Auswirkungen der Wasserbeimischung qualitativ wiedergegeben.

Im folgenden wird die Entwicklung der Brennkonzante eines Methanol/Wassertropfens bei steigendem Wasseranteil bestimmt. Die zeitliche Evolution eines Methanol/Wassertropfens mit verschiedenen Wasseranteilen ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Das Mischungsverhältnis der beiden Komponenten wird dabei im folgenden stets in Volumenanteilen angegeben.

Es zeigt sich eine deutlich erkennbare Abnahme der Brennkonzante mit steigendem Wasseranteil bzw. sinkendem Methanolanteil. Des weiteren zeigt die Verschiebung des Knicks in den Kurven nach rechts eine Verlängerung der Zündverzugszeit mit steigendem Wassergehalt an. Bei einem Methanolgehalt von 70 % oder geringer ist anhand des zweiten Knicks in den Kurven das Verlöschen des Tropfens zu erkennen. Es findet somit kein kompletter Abbrand des Tropfens statt. Vielmehr verdunstet der restliche Tropfen nach dem Verlöschen

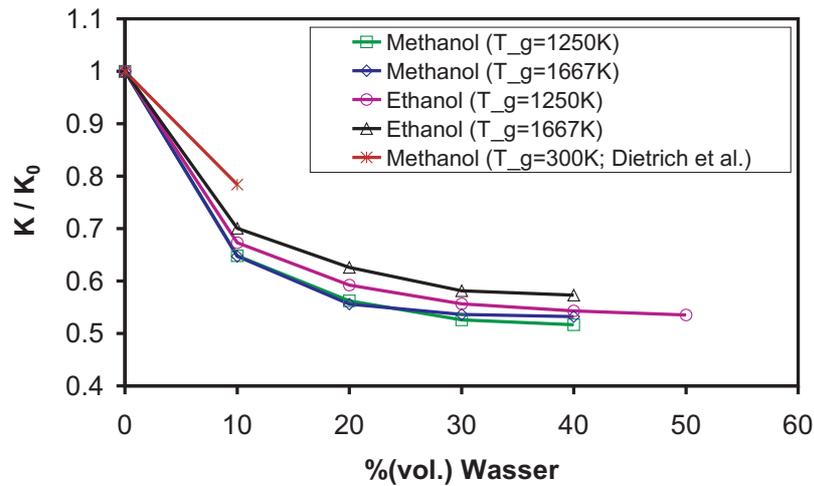


**Abbildung 5.2:** Zeitliche Evolution des Durchmessers eines Methanol/Wassertropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen von Methanol und Wasser ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1250$  K,  $T_D(0) = 342$  K)

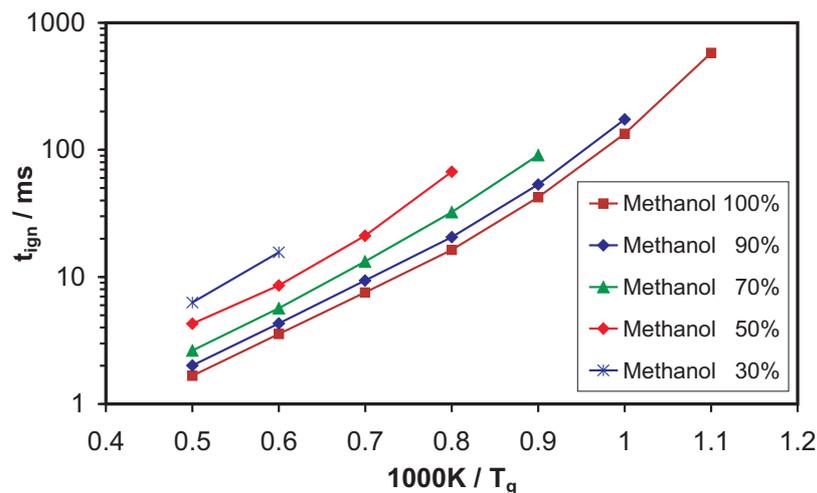
der Flamme mit einer geringeren Verdunstungskonstante. Des weiteren zeigt Abbildung 5.2, dass ab einem Methanolanteil von 40 % keine Selbstzündung des Tropfens stattfindet. Folglich weisen diese Fälle eine deutlich geringere Verdunstungskonstante auf. Abbildung 5.2 offenbart ebenfalls eine Abschwächung des Einflusses des Wassergehalts auf die Brennkonstante mit steigendem Wassergehalt. Dies lässt sich an der zunehmendem Angleichung der Steigungen der Kurven mit steigendem Wassergehalt erkennen. Da der Unterschied im Mischungsverhältnis für zwei benachbarte Kurven jeweils 10 % beträgt, kann man deshalb auf eine schwindende Sensitivität der Brennkonstante bezüglich des Mischungsverhältnisses mit steigendem Wassergehalt schließen. Jedoch nimmt der Einfluss des Wassergehalts auf die Dynamik des Abbrands mit steigendem Wasseranteil zu. Der zunehmende Wasseranteil führt zu einem früheren Verlöschen des Tropfens und schließlich zum gänzlichen Ausbleiben der Zündung.

Abbildung 5.3 zeigt die normierten Brennkonstanten für die Mischungsverhältnisse, bei denen ein Abbrand des Tropfens stattfindet.  $K/K_0$  bezeichnet die normierte Brennkonstante bezogen auf die jeweilige Brennkonstante eines reinen Alkoholtropfens. Es ist eine zunehmende Insensitivität der Brennkonstante bezüglich des Mischungsverhältnisses für steigende Wasseranteile erkennbar. Die Abhängigkeit der Brennkonstante vom Mischungsverhältnis fällt für Methanol stärker aus als für Ethanol, was auf die dem Wasser ähnlicheren physikalischen Stoffeigenschaften des Ethanols zurückzuführen ist. Generell ist jedoch eine erkennbare Übereinstimmung im Verlauf der Kurven festzustellen, die daraufhin deutet, dass der Einfluss des Mischungsverhältnisses auf die Brennkonstante nicht sonderlich durch andere Parameter wie Alkoholart oder Gastemperatur beeinflusst wird.

Der Einfluss des Mischungsverhältnisses auf die Zündverzugszeit eines Methanol/Wasser-



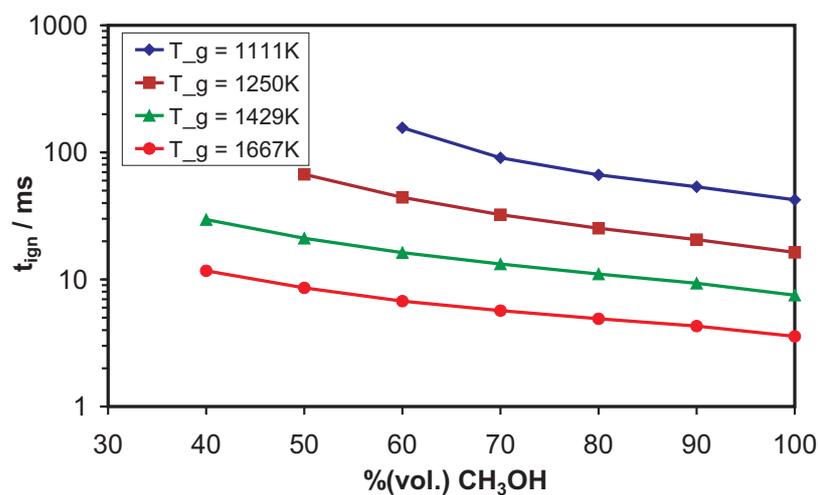
**Abbildung 5.3:** Abhängigkeit der Brennkonzante vom Mischungsverhältnis für den Fall brennender Methanol/Wassertropfen und Ethanol/Wassertropfen bei verschiedenen Gastemperaturen ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ )



**Abbildung 5.4:** Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von Methanol/Wassertropfen ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ )

tropfens wurde ebenfalls untersucht. Es wurden dazu dieselben Randbedingungen wie bei der Untersuchung der Evolution des Tropfendurchmessers gewählt, lediglich die Gastemperatur wurde zusätzlich variiert. Die ermittelten Zündverzugszeiten sind in einem Arrheniusdiagramm in Abbildung 5.4 dargestellt. Die Zündverzugszeiten weisen den typischen exponentiellen Anstieg mit sinkender Gastemperatur auf. Es ist ebenfalls deutlich zu erkennen, dass bei einer Gastemperatur mit zunehmendem Wassergehalt die Zündung des Tropfens später erfolgt. Darüber hinaus bleibt die Zündung mit zunehmendem Wassergehalt bei immer höheren Temperaturen komplett aus. Während z. B. ein Tropfen mit 10%

Wassergehalt bei einer Umgebungstemperatur von 1000 K noch zündet, benötigt ein Tropfen mit einem Wassergehalt von 50 % bereits eine Gastemperatur von ca. 1250 K, damit eine Zündung stattfindet. Die Simulationen werden dabei solange durchgeführt, bis der Tropfen komplett verdunstet ist. Da, wie in Abschnitt 4.9 gezeigt wurde, die Zündung bei lokal mageren Bedingungen stattfindet und somit die lokale Temperatur die treibende Größe des Zündprozesses darstellt, ist die Diffusion des Brennstoffs in das heiße umgebende Gas der den Zündverzug zeitlich limitierende und somit der die Zündverzugszeit bestimmende Prozess (siehe Abschnitt 4.9). Aufgrund der Zumischung des Wassers zum Brennstoff Methanol reduziert sich nun die Konzentration des Methanols an der Oberfläche des Tropfens und somit an jedem Punkt der Gasphase. Dies bedeutet eine Reduktion des Äquivalenzverhältnisses an einem zeitlich und räumlich festgelegten Punkt bei steigendem Wassergehalt des Tropfens. Diese Reduktion ist gleichbedeutend mit der Verlängerung der Zeitspanne, bis an einem Punkt im Raum lokal ein bestimmtes Äquivalenzverhältnis und eine bestimmte Temperatur vorherrschen. Dies entspricht einer Verlängerung der Zündverzugszeit. Der Effekt der geringeren Konzentration des Methanols an der Oberfläche wird bei einem bestimmten Wassergehalt im Laufe des instationären Verdunstungsprozesses weiterhin verstärkt, da aufgrund des höheren Dampfdrucks der Massenbruch des flüssigen Methanols an der Tropfenoberfläche absinkt. In Abbildung 5.4 lässt sich weiterhin eine Zunahme der Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis mit sinkender Gastemperatur erkennen. Dieser Umstand wird ebenfalls durch Abbildung 5.5 dokumentiert, in der die Zündverzugszeiten bei verschiedenen Gastemperaturen über dem Methanolgehalt des Tropfens aufgetragen sind.

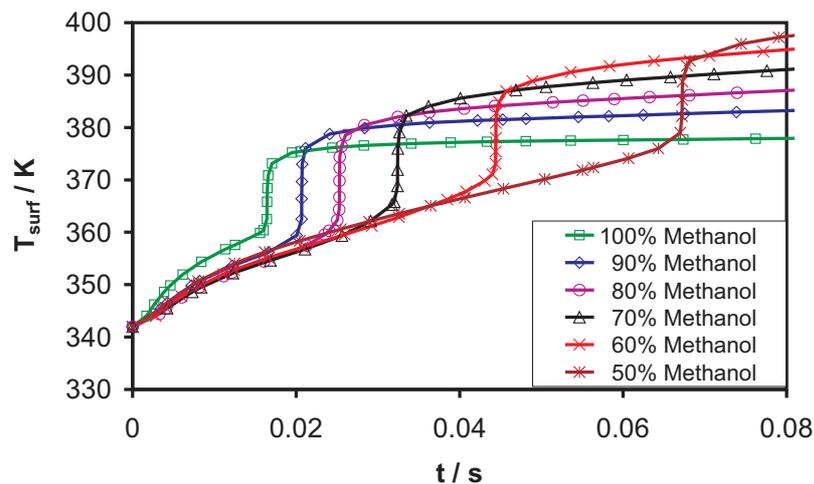


**Abbildung 5.5:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanol/Wassertropfens vom Mischungsverhältnis ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342$  K)

Abbildung 5.5 zeigt eine Zunahme der Sensitivität der Zündverzugszeit hinsichtlich der Gemischzusammensetzung bei sinkendem Methanolgehalt sowie bei sinkender Gastemperatur.

Untersuchungen der Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines homogenen gasförmigen stöchiometrischen Methanol/Wassergemisches haben eine lediglich geringe, lineare Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis aufgezeigt [34]. Somit ist diese Zunahme der Abhängigkeit der Zündverzugszeit ebenfalls auf Verdunstungs- und Transportprozesse zurückzuführen. Da bei sich ändernder Gemischzusammensetzung auch die Transportkoeffizienten wie Wärmeleitfähigkeit und Diffusionskoeffizienten und somit auch die Lewis-Zahl variieren, kann sich durchaus eine nichtlineare Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis ergeben.

Ein großer Nutzen detaillierter Simulationen besteht in der Möglichkeit, Vorgänge im Tropfen orts- und zeitaufgelöst zu analysieren. Im Fall der Zündung und Verbrennung eines Multikomponenten-Tropfens in einer heißen Gasatmosphäre sind die lokalen Bedingungen der flüssigen Phase an der Oberfläche des Tropfens von besonderer Bedeutung, da diese den Verdunstungsprozess maßgeblich beeinflussen. Abbildung 5.6 zeigt die zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines Methanol/Wassertropfens.

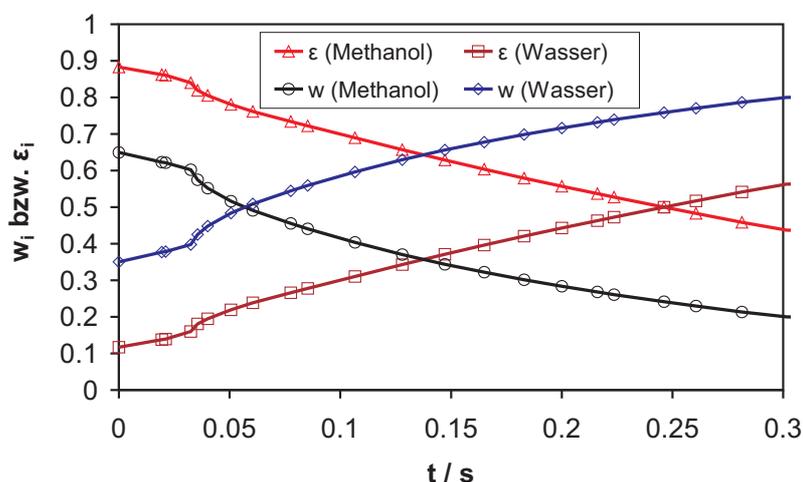


**Abbildung 5.6:** Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines Methanol/Wassertropfens ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ )

Es ist deutlich der Zeitpunkt der Zündung zu erkennen, der durch den steilen Anstieg der Temperatur charakterisiert wird. Anhand dieses Anstiegs lässt sich auch die bereits erwähnte Verlängerung der Zündverzugszeit mit zunehmendem Wassergehalt erkennen. Abbildung 5.6 zeigt zudem eine deutlich schnellere Aufheizung der Oberfläche des reinen Methanoltropfens im Vergleich zu Tropfen, die zusätzlich Wasser enthalten. Dies lässt sich auf die geringere Verdampfungsenthalpie von Methanol gegenüber Wasser zurückführen. Auffällig ist weiterhin die höhere Oberflächentemperatur während des Abbrands des Tropfens bei höherem Wassergehalt. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der im Vergleich zum Methanol höheren Siedetemperatur des Wassers. Zwar sorgt im Gegensatz dazu die größere Verdampfungsenthalpie des Wassers für eine Verminderung der Kühlgrenztemperatur des

Tropfens, jedoch wird die Erhöhung der Temperatur durch einen weiteren Effekt begünstigt. Da Wasser auch im Rahmen der Verbrennung als Produkt in der Gasphase gebildet wird, herrscht in der Umgebung des Tropfens eine höhere Sättigungsrate hinsichtlich des Wasserdampfes vor. Dies führt zu einer Reduktion des verdunstenden Massenstroms, die zu einem geringeren Aufwand an Verdampfungswärme führt. Folglich erreicht der Tropfen eine höhere Kühlgrenztemperatur.

Der Verdunstungs- bzw. Verbrennungsprozess eines Multikomponenten-Tropfens wird neben der Oberflächentemperatur durch das Mischungsverhältnis an der Oberfläche sowie den Verhältnissen der verdunstenden Massenströme der beteiligten Spezies charakterisiert bzw. bestimmt. Aus diesem Grund wird die zeitliche Evolution der Massenbrüche  $w$  sowie der Anteile  $\epsilon$  der einzelnen Spezies am verdunstenden Gesamtmassenstrom, die in Abbildung 5.7 dargestellt ist, im folgenden analysiert.



**Abbildung 5.7:** Zeitliche Evolution der Massenbrüche  $w$  sowie der Anteile  $\epsilon$  der einzelnen Spezies am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines Methanol/Wassertropfens (70 % vol. Methanol,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342$  K,  $T_g = 1250$  K)

Aufgrund der etwas geringeren Dichte des Methanols liegt der Massenbruch des Methanols zu Beginn mit einem Wert von ungefähr 0.65 unterhalb des Volumenanteils von 0.7. Der Anteil am verdunstenden Gesamtmassenstrom liegt aufgrund des höheren Dampfdrucks des Methanols mit ungefähr 0.9 jedoch deutlich höher. Dies führt im Laufe der Zeit zu einer Verringerung des Massenbruchs des flüssigen Methanols an der Oberfläche. Wie man an der Krümmung des Verlaufs des Massenbruchs von Methanol erkennen kann, wird diese Verringerung im Laufe der Zeit mit sinkendem Massenbruch schwächer. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der Diffusion der Spezies innerhalb des Tropfens. Da zu Beginn die Spezies innerhalb des Tropfens homogen verteilt sind, entsteht aufgrund der sich verändernden Massenbrüche der Spezies an der Oberfläche ein räumlicher Gradient der Speziesverteilung. Dieser verursacht einen Diffusionsstrom, der dem Absinken des Massenbruchs des Metha-

nols an der Oberfläche entgegenwirkt. Da es sich um lediglich zwei flüssige Spezies handelt, weisen der Massenbruch und der Anteil am verdunstenden Massenstrom des Wassers aus denselben Gründen das komplementäre Verhalten auf. Das beschriebene Verhalten zeigt, dass die Modellannahme des “Uniform state model“ [36] einer räumlich homogenen Speziesverteilung innerhalb des Tropfens sowie die Modellannahme des “Thin skin model“ [36] die realen Begebenheiten stark vereinfachen. Inwieweit sich diese Vereinfachungen jedoch auf globale Größen wie die Zündverzugszeit oder die Brennkonzstante auswirken, wird im Abschnitt 5.2 anhand eines n-Heptan/iso-Oktantropfens untersucht. Der Zeitpunkt der Zündung lässt sich wie im Fall der Oberflächentemperatur durch eine rapide Änderung des lokalen Zustands an der Tropfenoberfläche (ausgelöst u. a. durch einen rapiden Anstieg der Temperaturverteilung in der Gasphase und somit auch an der Tropfenoberfläche) erkennen. Die Untersuchung von Ethanol/Wassertropfen ergibt ein qualitativ vergleichbares Verhalten. Aufgrund der unterschiedlichen Stoffeigenschaften von Methanol und Ethanol bestehen jedoch natürlich quantitative Unterschiede. So weisen Ethanol/Wassertropfen bei gleichem Mischungsverhältnis um ca. 15 K höhere Kühlgrenztemperaturen als Methanol/Wassertropfen auf, was auf die höhere Siedetemperatur des Ethanols gegenüber des Methanols zurückzuführen ist. Aufgrund des geringeren Dampfdrucks bzw. der höheren Siedetemperatur ist Ethanol im Vergleich zu Methanol dem Wasser ähnlicher. Dies hat einen geringeren Unterschied zwischen flüssigem Massenbruch an der Oberfläche und Anteil am verdunstenden Massenstrom der einzelnen Spezies zur Folge. Die Ergebnisse für Ethanol/Wassertropfen sind im Anhang A dargestellt.

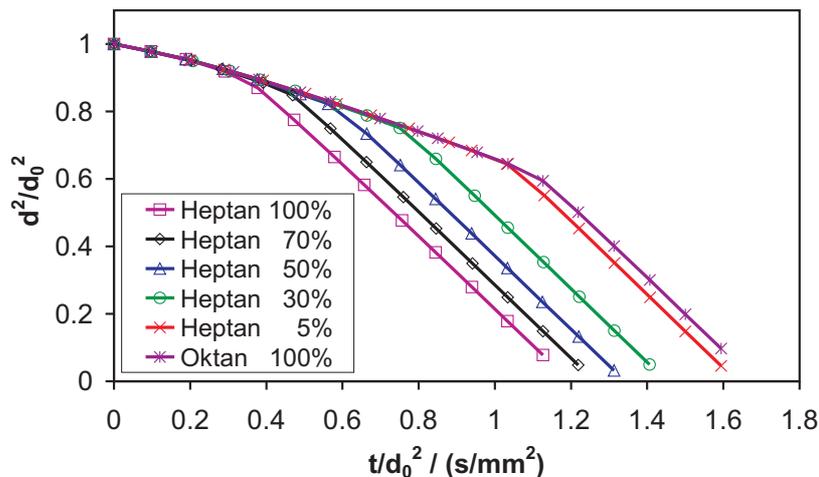
Die hier gefundenen Ergebnisse stimmen qualitativ mit den Resultaten von Marchese et al. [73] und mit den Resultaten von Megaridis und Sirignano [76] für Multikomponententropfen bestehend aus n-Oktan bzw. n-Dekan und Benzol hinsichtlich der verschiedenen Stoffeigenschaften überein.

## 5.2 Zündung und Verbrennung von n-Heptan/ iso-Oktantropfen

Bei technischen Brennstoffen handelt es sich zumeist um ein Gemisch aus einer Vielzahl von Kohlenwasserstoffen. Die Modellierung eines Kraftstofftropfens bestehend aus einer einzigen chemischen Spezies stellt somit eine erhebliche Vereinfachung der realen Bedingungen dar. Aus diesem Grund wird hier zur Modellierung eines Tropfens bestehend aus mehreren Kraftstoffen übergegangen. Aufgrund seiner historischen Bedeutung als Namensgeber für die Oktanzahl [50] wird hier ein Gemisch aus n-Heptan und iso-Oktan untersucht. Dabei wird der Einfluss der Gemischzusammensetzung auf die charakteristischen Größen des Zünd- und Verbrennungsprozesses, Zündverzugszeit und Brennkonzstante, ermittelt. Da ein technischer Brennstoff, dessen chemisches Verhalten durch eine bestimmte Oktanzahl

spezifiziert ist, sich aufgrund der Tatsache, dass er nicht ausschließlich aus n-Heptan und iso-Oktan besteht, hinsichtlich der physikalischen Eigenschaften stark von einer entsprechenden n-Heptan/iso-Oktan Mischung unterscheiden kann, werden Sensitivitäten des Zündverzugs hinsichtlich des Dampfdrucks und der Verdampfungsenthalpie der Spezies bestimmt. Des weiteren wird der Einfluss der Transportprozesse in der Flüssigphase auf den Verbrennungsverlauf des Tropfens erörtert.

In Abbildung 5.8 ist die zeitliche Entwicklung des Tropfendurchmessers von zündenden n-Heptan/iso-Oktantropfen mit verschiedenen Mischungsverhältnissen<sup>9</sup> dargestellt.



**Abbildung 5.8:** Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines n-Heptan/iso-Oktantropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen ( $p = 8 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 384 \text{ K}$ ,  $T_g = 909 \text{ K}$ )

Die jeweilige Zündung des Tropfens lässt sich deutlich am Knick der Kurve und der damit verbundenen Änderung der Steigung erkennen. Des weiteren ist eine Verlängerung des Zündverzugs mit steigendem Oktananteil bzw. steigender Oktanzahl sichtbar. Dieses Verhalten wird im folgenden Abschnitt genauer analysiert. Für alle Mischungsverhältnisse folgt der Tropfendurchmesser nicht nur dem bekannten  $d^2$ -Gesetz, vielmehr weisen die verschiedenen Kurven die gleiche Steigung und somit die gleiche Brennkonzante auf. Dieses Verhalten ist auf die für die Brennkonzante relevanten ähnlichen physikalischen Stoffeigenschaften von n-Heptan und iso-Oktan zurückzuführen, die in Tabelle 5.1 aufgeführt sind.

Die ähnlichen physikalischen Stoffeigenschaften sorgen dafür, dass sich das Verdunstungsverhalten des Tropfens bei Variation des Mischungsverhältnisses nicht allzu sehr verändert. Dieser Umstand wird auch durch die Identität der zeitlichen Entwicklung der jeweiligen Tropfendurchmesser in der transienten Phase vor dem Einsatz der Zündung dokumentiert. Der signifikante Einfluss des Mischungsverhältnisses auf die Zündverzugszeit wird hingegen in Abbildung 5.8 deutlich durch die Verschiebung des Knicks in den Kurven sichtbar.

<sup>9</sup>Auch in diesem Abschnitt wird das Mischungsverhältnis stets in Volumenanteilen angegeben.

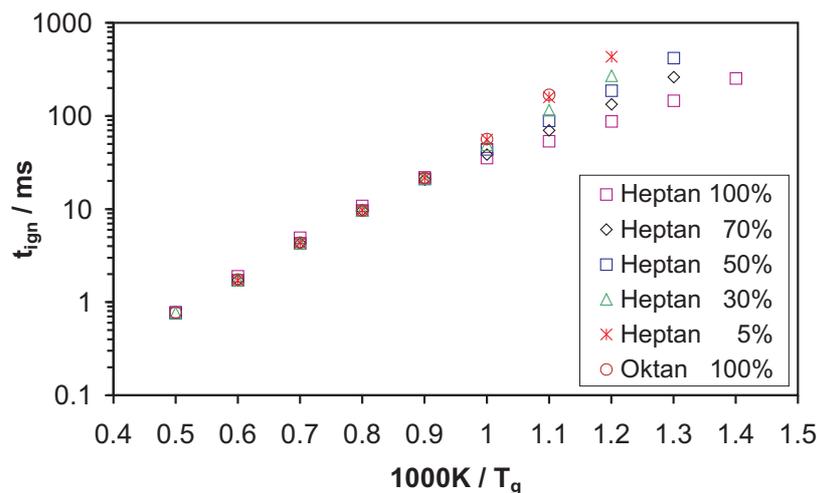
Physikalische Stoffeigenschaften					
	$T_{\text{boil}}$	$T_{\text{crit}}$	$p_{\text{krit}}$	$p_{\text{vap}}(300 \text{ K})$	$h_{\text{vap}}(300 \text{ K})$
n-Heptan	371.6 K	540.3 K	27.4 bar	0.0666 bar	365.1 J/g
iso-Oktan	372.4 K	544 K	25.7 bar	0.0720 bar	307.2 J/g

	$c_p^l(300 \text{ K})$	$\rho^l(300 \text{ K})$	$\lambda^g(300 \text{ K})$
n-Heptan	2.27 kJ/(kg·K)	676.7 kg/m <sup>3</sup>	13.4 mW/(m·K)
iso-Oktan	2.15 kJ/(kg·K)	687.0 kg/m <sup>3</sup>	13.6 mW/(m·K)

**Tabelle 5.1:** Vergleich der physikalischen Stoffeigenschaften von n-Heptan und iso-Oktan (nach [101])

Aus diesem Grund wird nun die Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis untersucht. Abbildung 5.9 zeigt ein Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten für verschiedene Mischungsverhältnisse bzw. Oktanzahlen der Tropfen.

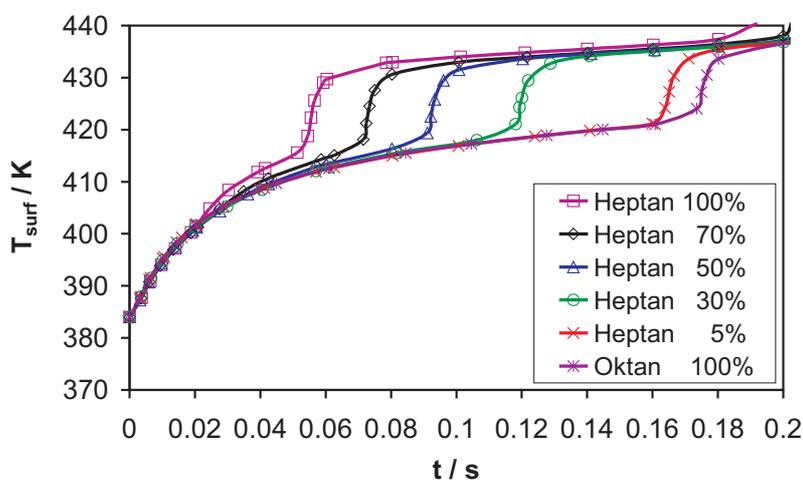


**Abbildung 5.9:** Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von n-Heptan/iso-Oktantropfen ( $p = 8 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 384 \text{ K}$ )

Der typische exponentielle Anstieg der Zündverzugszeit mit sinkender Gastemperatur ist erkennbar. Oberhalb 1000 K lassen sich keine signifikanten Unterschiede in den Zündverzugszeiten hinsichtlich der Oktanzahl feststellen. Unterhalb 1000 K ändert sich die Steigung der jeweiligen Kurven, und es tritt eine deutliche Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Oktanzahl auf. Dieses Resultat der signifikanten Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Oktanzahl erhält man auch für eine homogene, stöchiometrische Gasmischung bestehend aus n-Heptan, iso-Oktan und Luft unterhalb 1000 K. Der Einfluss der Oktanzahl auf die Zündverzugszeit ist auch für homogene, stöchiometrische Gasmischungen für Temperaturen oberhalb 1000 K deutlich geringer als unterhalb 1000 K [5, 34]. Dies führt folglich zu einem

ebenfalls geringen Einfluss der Oktanzahl im Fall eines zündenden Einzeltropfens. Zudem gelten oberhalb 1000 K die physikalischen Transportprozesse als geschwindigkeitsbestimmend für den Zündprozess (siehe Kapitel 4, [122]), woraus aufgrund der ähnlichen physikalischen Eigenschaften von n-Heptan und iso-Oktan eine Insensitivität der Zündverzugszeit hinsichtlich der Oktanzahl folgt. Die Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis unterhalb 1000 K führt zu dem Umstand, dass bei sinkender Gastemperatur lediglich Tropfen mit immer geringer werdender Oktanzahl noch zünden, wohingegen in einem immer größer werdenden Oktanzahlbereich die Zündung komplett ausbleibt. Das gleiche Phänomen lässt sich für Alkohol/Wassertropfen beobachten, wie Abschnitt 5.1 zeigt. Es ist zu beachten, dass der Bereich von 800 K bis 1000 K sowohl für motorische Anwendungen als auch für Gasturbinen von Bedeutung ist. Eine generelle Aussage über die Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Mischungsverhältnis, die für den gesamten, technisch relevanten Temperaturbereich Gültigkeit hat, scheint nicht möglich zu sein.

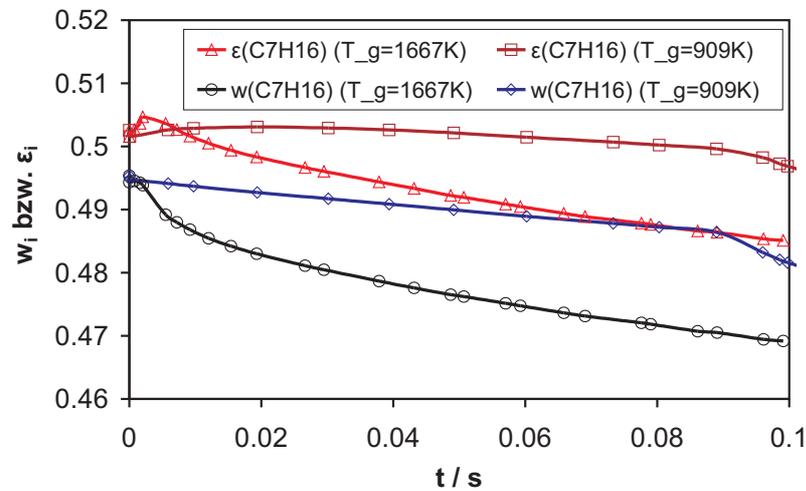
Wie bereits in Abschnitt 5.1 erwähnt besteht ein großer Vorteil der detaillierten Simulation in der Möglichkeit, Vorgänge im Tropfen orts- und zeitaufgelöst zu untersuchen. Aufgrund ihrer maßgeblichen Bedeutung hinsichtlich des Verdunstungsverhaltens eines Tropfens wird zunächst die Oberflächentemperatur betrachtet, deren zeitlicher Verlauf für eine Gastemperatur und verschiedene Oktanzahlen in Abbildung 5.10 gezeigt ist.



**Abbildung 5.10:** Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines n-Heptan/iso-Oktantropfens für verschiedene Oktanzahlen ( $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 909$  K,  $T_D(0) = 384$  K)

Auch hier zeigen sich aufgrund der ähnlichen physikalischen Eigenschaften der beiden Spezies nur minimale Unterschiede im Temperaturverlauf an der Oberfläche. Lediglich die Verschiebung des Zündzeitpunkts durch die Veränderung der Oktanzahlen führt zu signifikanten Unterschieden. Die Ähnlichkeit der physikalischen Eigenschaften zeichnet sich auch in Abbildung 5.11 ab, in der der zeitliche Verlauf des Massenbruchs  $w$  sowie des Anteils  $\epsilon$  am verdunstenden Gesamtmassenstrom des n-Heptans für zwei verschiedene Gastemperaturen

dargestellt ist.



**Abbildung 5.11:** Zeitliche Evolution des Massenbruchs  $w$  sowie des Anteils  $\epsilon$  von n-Heptan am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines n-Heptan/iso-Oktantropfens (Oktanzahl 50,  $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 384$  K)

Analog zu den Resultaten der Alkohol/Wassertropfen in Abschnitt 5.1 liegt der Anteil am verdunstenden Massenstrom für die flüchtigere Spezies n-Heptan über dem entsprechenden Massenbruch dieser Spezies. Dieser Umstand führt zu einer Verringerung des Massenbruchs an der Oberfläche und somit zu einer Verringerung des Anteils am Gesamtmassenstrom mit der Zeit. Wie die Skalierung der y-Achse zeigt, spielt sich diese Veränderung des Massenbruchs aufgrund der ähnlichen Eigenschaften von n-Heptan und iso-Oktan im Vergleich zu Methanol/Wassertropfen auf einem weitaus kleineren Maßstab ab.

Auch wenn zwei Gemische bestehend aus verschiedenen Brennstoffen dieselbe Oktanzahl besitzen, können deren physikalische Eigenschaften sich deutlich voneinander unterscheiden. Dieser Fall tritt dann auf, wenn die Komponenten der Gemische in ihren physikalischen Stoffeigenschaften stark differieren. Da n-Heptan und iso-Oktan eine starke Ähnlichkeit hinsichtlich der Stoffeigenschaften aufweisen und da zudem ein zweites Gemisch mit derselben Oktanzahl und unterschiedlichen Stoffeigenschaften als Vergleichsmöglichkeit fehlt<sup>10</sup>, wird hier der Einfluss verschiedener Stoffeigenschaften auf den Zünd- und Verbrennungsprozess durch Variation derselben analysiert. Dies erlaubt, durch Extrapolation (qualitative) Aussagen über das Verhalten von anderen Gemischen mit derselben Oktanzahl, aber unterschiedlichen Stoffeigenschaften zu treffen. Zunächst wird der Einfluss von Dampfdruck

<sup>10</sup>Die Simulation der Zündung und Verbrennung eines Tropfens bestehend aus einem Gemisch aus mehreren ( $> 2$ ) Komponenten und mit einer definierten Oktanzahl ist nicht möglich, da ein geeigneter Reaktionsmechanismus nicht erhältlich ist. Es sind lediglich Reaktionsmechanismen mit ausreichendem Detailgrad bekannt, die durch ihre hohe Anzahl der chemischen Spezies und Reaktionen für das zu untersuchende System einen nicht zu bewältigenden Rechenaufwand erfordern.

und Verdampfungsenthalpie mittels einer Sensitivitätsanalyse charakterisiert. Anschließend werden die Ergebnisse von Simulationen mit einem detaillierten Transportmodell in der flüssigen Phase Ergebnissen von Simulationen mit nahezu unendlich schnellen Transportprozessen bzw. nahezu unendlich langsamen Transportprozessen gegenübergestellt. Diese Gegenüberstellung gibt Aufschluss über den Einfluss der Transportprozesse im Innern des Tropfens.

Die Sensitivitätsanalyse wird durch eine "brute force"-Methode durchgeführt. Dies bedeutet, dass ausgehend von einer Konfiguration mit bestimmten Umgebungsbedingungen (Oktan-zahl 80,  $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1000$  K,  $T_D(0) = 384$  K) zunächst die Verdampfungsenthalpie durch Multiplikation mit dem Faktor 1.5 und anschließend der Dampfdruck der einzelnen Spezies mit dem Faktor 1.2 variiert wird. Als Ergebnis der Analyse wird die Sensitivität der Zündverzugszeit bezüglich der jeweiligen Ausgangsgröße bestimmt. Bei Variation der Verdampfungsenthalpie von n-Heptan lässt sich dabei keine signifikante Änderung ( $\leq 0.2\%$ ) der Zündverzugszeit feststellen, selbst wenn die Verdampfungsenthalpie um den Faktor 1.5 variiert worden ist. Im Gegensatz dazu ergibt die Variation der Verdampfungsenthalpie des iso-Oktans durchaus eine messbare (relative) Sensitivität der Zündverzugszeit  $t_{ign}$  bezüglich der Verdampfungsenthalpie  $h_{vap,C8H18}$ .

$$\frac{\partial(\ln t_{ign})}{\partial(\ln h_{vap,C8H18})} = \frac{h_{vap,C8H18}}{t_{ign}} \cdot \frac{\partial t_{ign}}{\partial h_{vap,C8H18}} \approx \frac{h_{vap,C8H18}}{t_{ign}} \cdot \frac{\Delta t_{ign}}{\Delta h_{vap,C8H18}} = 0.031 \quad (5.1)$$

Die sehr viel höhere Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Verdampfungsenthalpie des iso-Oktans im Gegensatz zum n-Heptan kann durch den Umstand erklärt werden, dass die gesamte Verdampfungsenthalpie des Tropfens aufgrund des höheren Mischungsanteils von 80 % und des daraus resultierenden bedeutend höheren Anteils am verdunstenden Gesamtmassenstrom hauptsächlich durch das iso-Oktan bestimmt wird. Dadurch wird die Energiebilanz an der Tropfenoberfläche maßgeblich durch die Verdampfungsenthalpie des iso-Oktans beeinflusst. Bei einer Inversion des Mischungsverhältnisses würde sich somit das umgekehrte Bild hinsichtlich der beiden beteiligten Spezies ergeben.

Die Sensitivitätsanalyse des Einflusses der Dampfdrücke zeigt eine stärkere Sensitivität der Zündverzugszeit hinsichtlich der Dampfdrücke verglichen mit den Verdampfungsenthalpien. Für die Sensitivitäten bezüglich der Dampfdrücke der beiden Komponenten des Tropfens  $p_{vap,C7H16}$  und  $p_{vap,C8H18}$  erhält man

$$\frac{\partial(\ln t_{ign})}{\partial(\ln p_{vap,C7H16})} \approx \frac{p_{vap,C7H16}}{t_{ign}} \cdot \frac{\Delta t_{ign}}{\Delta p_{vap,C7H16}} = -0.091 \quad (5.2)$$

$$\frac{\partial(\ln t_{ign})}{\partial(\ln p_{vap,C8H18})} \approx \frac{p_{vap,C8H18}}{t_{ign}} \cdot \frac{\Delta t_{ign}}{\Delta p_{vap,C8H18}} = -0.032 \quad (5.3)$$

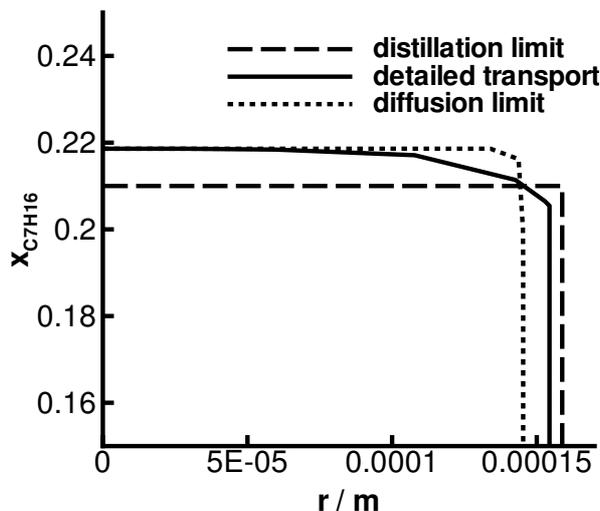
Beide Sensitivitäten haben ein negatives Vorzeichen. Dies bedeutet eine Verringerung der Zündverzugszeit bei einer Erhöhung der Dampfdrücke und entspricht somit dem zu erwartenden Verhalten. Die um den Faktor 3 höhere Sensitivität des n-Heptans gegenüber dem

iso-Oktan ist hingegen bemerkenswert, da der Anteil des n-Heptans an der Mischung doch wesentlich geringer ist. Es liegt somit der Schluss nahe, dass die Auslösung der Zündung vorwiegend durch die zündwilligere Komponente n-Heptan bestimmt wird, obwohl sie nur einen geringeren Teil der Tropfenmasse ausmacht. Nichtsdestotrotz ergibt sich ebenfalls ein signifikanter Einfluss des Dampfdrucks der zündunwilligeren Komponente iso-Oktan auf die Zündverzugszeit. Im Gegensatz zur Zündverzugszeit wird der Verdunstungsprozess des Tropfens nur unwesentlich durch die veränderten Dampfdrücke beeinflusst. Die Resultate der Simulationen mit modifizierten Dampfdrücken weisen keine signifikante Veränderung der Brennkonzstante auf.

Im folgenden wird der Einfluss der Transportprozesse und der zugehörigen Stoffeigenschaften auf den Zünd- und Verbrennungsprozess eines n-Heptan/iso-Oktantropfens untersucht. Dazu werden die Resultate von Simulationen unter Berücksichtigung des in Kapitel 2 beschriebenen detaillierten Transportmodells mit Resultaten unter der Annahme nahezu unendlich schneller Transportprozesse (verdunstungslimitiert, "distillation limited") und nahezu unendlich langsamer Transportprozesse (diffusionslimitiert, "diffusion limited") miteinander verglichen. Der verdunstungslimitierte und der diffusionslimitierte Fall werden durch die Multiplikation der Transporteigenschaften in der flüssigen Phase, i. e. Wärmeleitfähigkeit und Diffusionskoeffizienten, mit dem Faktor  $10^3$  bzw.  $10^{-3}$  modelliert. Diese beiden Grenzfälle stellen in der Literatur häufig verwendete Näherungen, die z. B. die Bezeichnungen "Thin skin model" und "Uniform state model" tragen [36], dar [36, 60]. In den folgenden Abbildungen 5.12 bis 5.15 repräsentieren die durchgezogenen Linien (—) die Resultate unter Verwendung des detaillierten Transportmodells, wohingegen die gestrichelten Linien (- - -) den verdunstungslimitierten Grenzfall und die punktierten Linien ( $\cdots$ ) den diffusionslimitierten Grenzfall darstellen. Abbildung 5.12 zeigt die Profile des Molenbruchs von n-Heptan im Innern des Tropfens nach 0.1 s.

Im verdunstungslimitierten Grenzfall lässt sich eine Gleichverteilung des n-Heptans im Innern des Tropfens aufgrund des beschleunigten Stofftransports erkennen. Somit wird der Mischungsanteil des n-Heptans an der Tropfenoberfläche durch dieses Modell überschätzt. Das Profil des detaillierten Transportmodells weist den typischen Verlauf der Verteilung der flüchtigeren Komponente auf [114]. Im Zentrum des Tropfens herrscht die anfängliche Gemischzusammensetzung, wohingegen an der Oberfläche der Anteil des n-Heptans aufgrund des höheren Dampfdrucks bereits abgenommen hat. Im diffusionslimitierten Grenzfall wird dieses Phänomen künstlich verstärkt, da ein Ausgleich aufgrund diffusiver Prozesse ausbleibt.

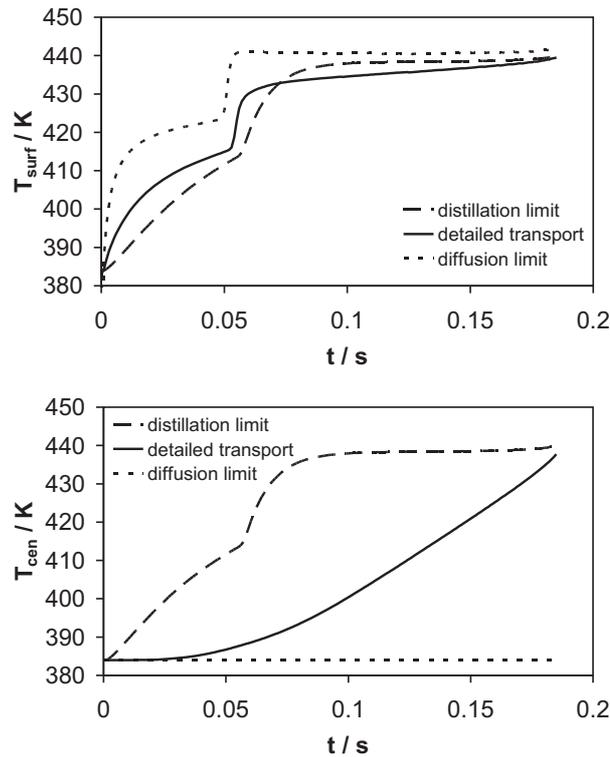
Abbildung 5.12 offenbart ebenfalls erkennbare Unterschiede zwischen den jeweiligen Tropfenradien, die auf die Unterschiede im zeitlichen Verlauf der Temperaturen an der Tropfenoberfläche und im Zentrum des Tropfens, die in Abbildung 5.13 dargestellt sind, zurückgeführt werden können. Wie man an dem typischen Sprung im Temperaturverlauf der Oberflächentemperatur erkennen kann, beträgt die Zündverzugszeit in allen drei Fällen un-



**Abbildung 5.12:** Profile des Molenbruchs von n-Heptan im Innern des Tropfens ( $t = 0.1$  s,  $T_g = 1000$  K,  $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200$   $\mu$ m)

gefäher 0.05 s. Im Fall des detaillierten Transportmodells zeigt die Temperatur im Zentrum den typischen im Vergleich zur Oberflächentemperatur verzögerten Anstieg [60, 138]. Aufgrund der extrem langsamen Transportprozesse im diffusionslimitierten Grenzfall bleibt die Temperatur im Zentrum nahezu konstant. Die fehlende Wärmeableitung an der Oberfläche führt zudem zu einer Überschätzung der Oberflächentemperatur in diesem Fall. Dies hat eine Überschätzung der Verdunstungsrate zur Folge, die zu einer schnelleren Regression des Radius führt, wie man in Abbildung 5.12 erkennen kann. Durch die überschätzte Wärmeleitung im Tropfeninnern wird im verdunstungslimitierten Fall zunächst die Oberflächentemperatur unterschätzt, was zu einer Unterschätzung der Verdunstungsrate führt. Jedoch erreicht der Tropfen schneller seine Kühlgrenztemperatur, woraus nach ca. 0.08 s eine Überschätzung der Oberflächentemperatur folgt. Die anfängliche Unterschätzung der Oberflächentemperatur hat eine Überschätzung des Tropfenradius nach 0.1 s zur Folge (siehe Abbildung 5.12). Die Temperatur im Zentrum hingegen folgt in diesem Fall nahezu instantan der Oberflächentemperatur und liegt somit beträchtlich über der Temperatur im Zentrum des detaillierten Modells. Die erhaltenen Resultate entsprechen qualitativ den Vorhersagen von Faeth [36] und Law [60] sowie den Ergebnissen von Makino und Law [71] für Dodekan/Hexadekan-Tropfen.

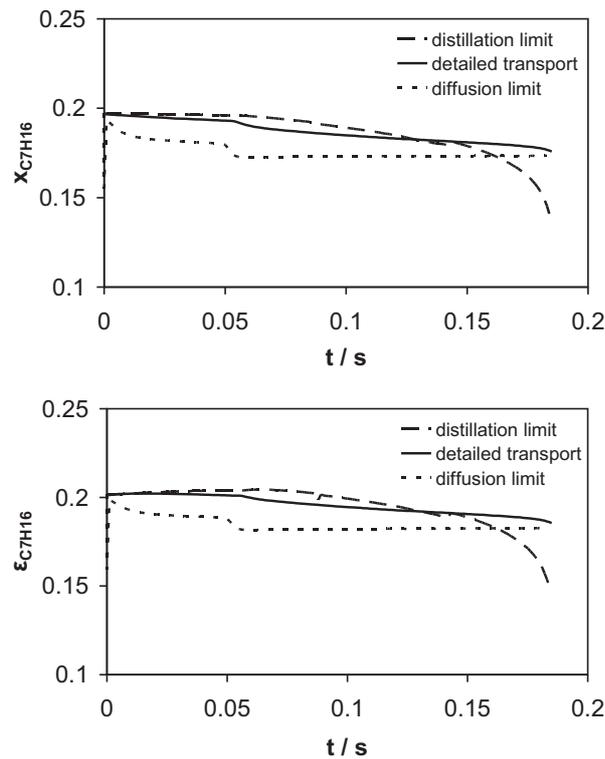
Abbildung 5.14 zeigt den zeitlichen Verlauf des Massenbruchs des n-Heptans in der flüssigen Phase an der Oberfläche sowie dessen Anteil am verdunstenden Gesamtmassenstrom. In allen Fällen wird aufgrund der höheren Flüchtigkeit des n-Heptans eine Abnahme des Massenbruchs mit der Zeit beobachtet. Die höhere Flüchtigkeit des n-Heptans äußert sich hier durch die Tatsache, dass der Anteil des n-Heptans am Gesamtmassenstrom größer ist als der zugehörige Wert des Massenbruchs. Dieses Verhalten ließ sich bereits bei den Alkohol/Was-



**Abbildung 5.13:** Zeitliche Evolution der Temperatur an der Oberfläche (oben) und im Mittelpunkt (unten) des Tropfens ( $T_g = 1000 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

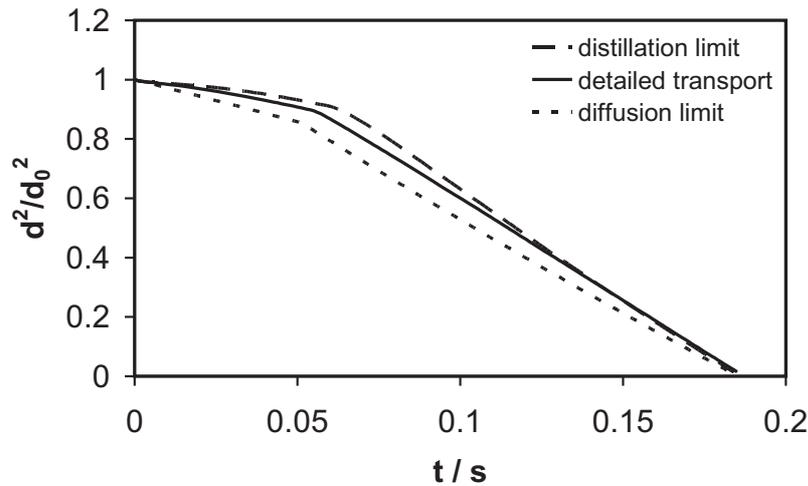
sertropfen feststellen. Unter detaillierter Berücksichtigung der Transportprozesse nimmt der Massenbruch des n-Heptans monoton mit der Zeit ab. Im verdunstungslimitierten Grenzfall bleibt der Massenbruch des n-Heptans zu Beginn nahezu konstant, da aufgrund der beschleunigten Diffusion genügend n-Heptan aus dem Tropfeninnern nachgeliefert wird, um den Rückgang des n-Heptans an der Oberfläche aufgrund der Verdunstung zu kompensieren. Da somit aufgrund der Überschätzung des n-Heptan-Stroms mehr n-Heptan verbraucht wird, fällt der Massenbruch am Ende der Lebensdauer des Tropfens rapide ab, da sich der Gesamtanteil des n-Heptans des Tropfens verringert hat. Im diffusionslimitierten Grenzfall ergibt sich das umgekehrte Bild. Aufgrund der fehlenden Kompensation (durch Diffusion) des Verlusts des n-Heptans durch Verdunstung, sinkt der Massenbruch des n-Heptans zunächst stärker ab, bis sich ab ca. 0,06 s ein zeitlich konstanter Wert einstellt, der durch das Mischungsverhältnis und das Dampfdruckverhältnis der Komponenten bestimmt ist. Die hier erhaltenen Resultate stehen qualitativ im Einklang mit den Ergebnissen von Megaridis und Sirignano für Tropfen bestehend aus n-Oktan bzw. n-Dekan und Benzol [76].

In Abbildung 5.15 sind die zeitlichen Entwicklungen des Tropfendurchmessers der drei untersuchten Fälle gegenübergestellt. Der Zeitpunkt der Zündung kann durch den deutlichen Knick in den jeweiligen Kurven erkannt werden. Auch wenn die Zündverzugszeit für alle drei Fälle um die 0,05 s beträgt, lässt sich eine generelle Verkürzung der Zündverzugszeit



**Abbildung 5.14:** Zeitliche Evolution des Massenbruchs der flüssigen Phase  $w$  an der Oberfläche (oben) sowie des Anteils  $\epsilon$  (unten) von n-Heptan am verdunstenden Gesamtmassenstrom ( $T_g = 1000$  K,  $p = 8$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

vom verdunstungslimitierten über den Fall des detaillierten Transports hin zum diffusionslimitierten Grenzfall klar erkennen. Die Ursache dafür liegt hauptsächlich in dem im diffusionslimitierten Grenzfall erhöhten Verdunstungsmassenstrom, der an der stärkeren Abnahme des Durchmessers vor der Zündung erkannt werden kann. Dieser erhöhte Verdunstungsstrom sorgt für eine schnellere Bildung einer zündfähigen Mischung in der Gasphase. Die Überschätzung der Zündverzugszeit im verdunstungslimitierten Grenzfall steht dabei in Einklang mit den Resultaten von Aggarwal [3]. Des weiteren offenbart Abbildung 5.15 erhebliche Unterschiede in den Brennkosten der drei untersuchten Fälle. Es wurden Variationen in den Brennkosten von ca. 15% ermittelt. Unter Berücksichtigung detaillierter Transportprozesse erhält man eine Brennkostenkonstante von  $K = 1.08 \text{ mm}^2/\text{s}$ . Im verdunstungslimitierten Fall wird die Brennkostenkonstante überschätzt, und es ergibt sich  $K = 1.18 \text{ mm}^2/\text{s}$ . Die Annahme des diffusionslimitierten Grenzfalls führt zu einer Brennkostenkonstante von  $K = 1.02 \text{ mm}^2/\text{s}$ , die unterhalb des Wertes des detaillierten Falls liegt. Die Tropfenlebensdauer der drei untersuchten Fälle sind nahezu identisch. Dieses Resultat für Multikomponenten-Tropfen stimmt mit den Ergebnissen für Tropfen aus reinem Oktan von Law überein [60]. Dennoch können diese Unterschiede in der Brennkostenkonstante, z. B. im Fall der Modellierung des Abbrands eines Tropfens bestehend aus mehreren Komponenten mit



**Abbildung 5.15:** Zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers ( $T_g = 1000 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

sehr unterschiedlichen Stoffeigenschaften, zu merklichen Unterschieden in der Lebensdauer der Tropfen führen.

Abschließend kann festgestellt werden, dass sich der Zündungs- und Verbrennungsprozess eines Tropfens bestehend aus einem Gemisch aus Brennstoffen durchaus sensitiv bezüglich diverser physikalischer Stoffeigenschaften zeigt. So können (bei gleichbleibender Oktanzahl) Änderungen der Verdunstungseigenschaften, wie Dampfdruck oder Verdampfungsenthalpie, die durch entsprechende Kombination von Komponenten erreicht werden können, eine Veränderung der Zündverzugszeit zur Folge haben. Der Vergleich der Resultate von Simulationen mit einem detaillierten Transportmodell mit den Resultaten des verdunstungslimitierten und des diffusionslimitierten Grenzfalles zeigt, dass sich signifikante Unterschiede in den Zielgrößen ergeben können. Die Quantität dieser Unterschiede hängt jedoch mit Sicherheit von den vorhandenen Umgebungsbedingungen ab. Des weiteren ist die Relevanz der Unterschiede in den Zielgrößen vor dem Hintergrund der erforderlichen bzw. erwünschten Genauigkeit zu beurteilen.

Der Übergang in der Simulation der Verbrennung von Einkomponenten-Tropfen zu Multikomponenten-Tropfen stellt den ersten Schritt zur Modellierung der Zündung und Verbrennung von Kraftstofftropfen mit einer definierten Oktanzahl dar. Die hier erhaltenen Resultate zeigen, dass es der Einbeziehung weiterer Komponenten bzw. der Weiterentwicklung der Modelle bedarf, um sowohl die chemischen als auch physikalischen Eigenschaften von komplexen realen Kraftstoffen darzustellen.

# Kapitel 6

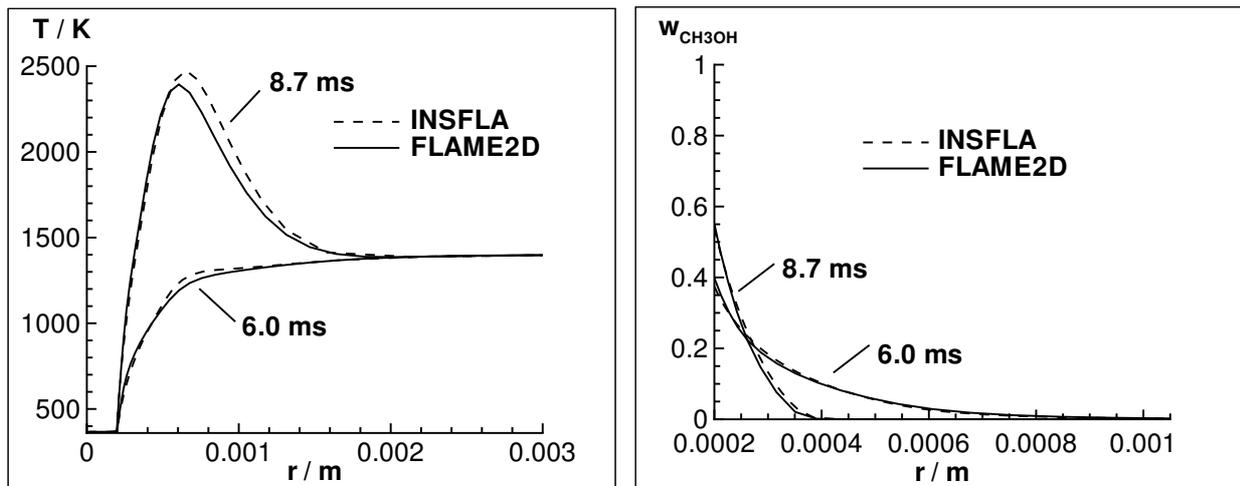
## Modellierung der Zündung und Verbrennung von Tropfen in einer äußeren Gasströmung

In allen technischen Systemen, in denen die Zündung oder Verbrennung eines Kraftstoffsprays auftritt, sind die Kraftstofftropfen einer äußeren Gasströmung ausgesetzt. Dieser Umstand entspricht einer Relativbewegung von Tropfen und umgebender Gasphase. Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt ist trotz dieser Tatsache der Einfluss der Geschwindigkeit und Beschleunigung einer Gasströmung auf die Zündung und Verbrennung eines Kraftstofftropfens nicht ausreichend untersucht worden. Aus diesem Grund soll in dieser Arbeit die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit und -beschleunigung untersucht werden. Des weiteren wird sowohl die Lage als auch die Gemischzusammensetzung am Zündort analysiert. Als Brennstoffe werden Methanol sowie n-Heptan verwendet, die als alternativer Brennstoff [40, 88] bzw. als Modellbrennstoff für reale Kraftstoffe von Bedeutung sind. Zudem erfordert die jeweilige chemische Kinetik der beiden Brennstoffe einen bewältigbaren Rechenaufwand bei Verwendung von detaillierten Reaktionsmechanismen.

### 6.1 Validierung des Simulationstools

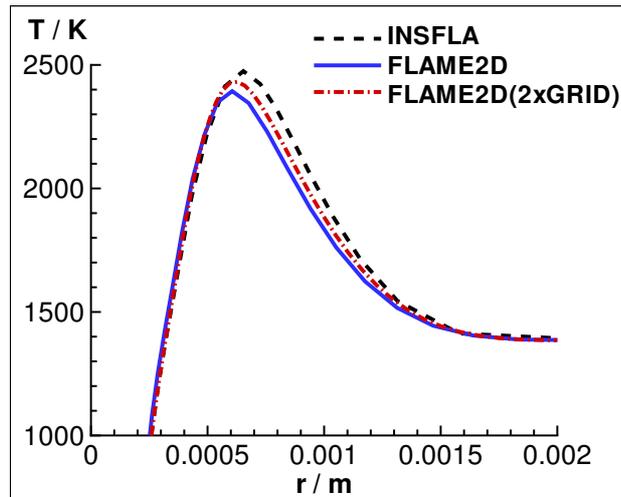
Das entwickelte Simulationstool FLAME2D ermöglicht durch die Wahl geeigneter Randbedingungen auch die Simulation von Szenarien mit sphärischer Symmetrie. Somit ist ein Vergleich der Ergebnisse mit den Resultaten des zur Simulation eindimensionaler Verbrennungsprozesse geeigneten Tools INSFLA möglich. Die Gültigkeit der Ergebnisse, die mit INSFLA erzielt werden, wurde bereits in Kapitel 4 gezeigt.

In Abbildung 6.1 sind die Resultate der Simulationen der Zündung und Verbrennung eines Methanoltropfens in einer Gasatmosphäre bestehend aus Luft bei einem Umgebungsdruck von  $p = 8$  bar und einer Umgebungstemperatur von  $T_g = 1400$  K gegenübergestellt. Die



**Abbildung 6.1:** Radiale Profile der Temperatur (links) und des Massenbruchs von Methanol zu zwei verschiedenen Zeitpunkten ( $t_1 = 6.0 \text{ ms}$ ,  $t_2 = 8.7 \text{ ms}$ ,  $T_g = 1400 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ )

Simulation dieses Verbrennungsprozesses wurde sowohl mit FLAME2D als auch mit INSFLA durchgeführt. Auf der linken Seite sind die radialen Temperaturprofile zu einem Zeitpunkt vor der Zündung ( $6.0 \text{ ms}$ ) sowie zu einem Zeitpunkt nach der Zündung ( $8.7 \text{ ms}$ ), nachdem sich eine Flamme um den Tropfen gebildet hat, dargestellt. Auf der rechten Seite sind die Profile des Massenbruchs von Methanol zu den jeweiligen Zeitpunkten abgebildet. Der Verlauf der Profile stimmt gut überein. Nichtsdestotrotz ist ein Unterschied von ca.  $80 \text{ K}$  in der Flammentemperatur zu erkennen. Darüber hinaus wurde die erhaltene Zündverzugszeit der beiden Simulationen miteinander verglichen. FLAME2D liefert dabei eine Zündverzugszeit, die ca.  $5 \%$  über der Zündverzugszeit von INSFLA liegt. Die Unterschiede in den Ergebnissen werden auf die Unterschiede in den numerischen Methoden der beiden Simulationstools zurückgeführt. Die höhere numerische Diffusion im Fall von FLAME2D hat ihren Ursprung in der Berechnung der konvektiven Flüsse, die durch ein Verfahren erster Ordnung realisiert wird. Dieses unerwünschte Auftreten von numerischer Diffusion wird im Fall von INSFLA durch die Transformation der eindimensionalen Erhaltungsgleichungen in Lagrange-Koordinaten vermieden, da bei der Transformation in diese Koordinaten die konvektiven Terme wegfallen (siehe Kapitel 3, [66, 69, 122]). Für räumlich zweidimensionale Systeme birgt eine solche Transformation erhebliche Schwierigkeiten, da eine Verwindung des Rechengitters auftreten kann, die eine Regularisierung des Gitters notwendig macht [102]. Eine Verdopplung der Gitterpunktanzahl in radialer Richtung von FLAME2D reduziert aufgrund des geringeren Gitterpunktabstands die numerische Diffusion. Dadurch erhöht sich die Flammentemperatur um  $50 \text{ K}$  und liegt somit lediglich  $30 \text{ K}$  unterhalb der Flammentemperatur von INSFLA. In Abbildung 6.2 sind die radialen Temperaturprofile der Simulationen mit INSFLA, FLAME2D und FLAME2D mit doppelter Gitterpunktanzahl (2xGRID) dargestellt.



**Abbildung 6.2:** Radiale Profile der Temperatur der Simulationen mit INSFLA, FLAME2D und FLAME2D mit doppelter Gitterpunktanzahl (2xGRID) ( $t = 8.7 \text{ ms}$ ,  $T_g = 1400 \text{ K}$ ,  $p = 8 \text{ bar}$ )

Die folgenden Resultate wurden jedoch durch Simulationen erhalten, bei denen die ursprüngliche Anzahl an Gitterpunkten verwendet wurde, um einen bewältigbaren Rechenaufwand bzw. Simulationsdauer zu gewährleisten.

## 6.2 Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Zündprozess

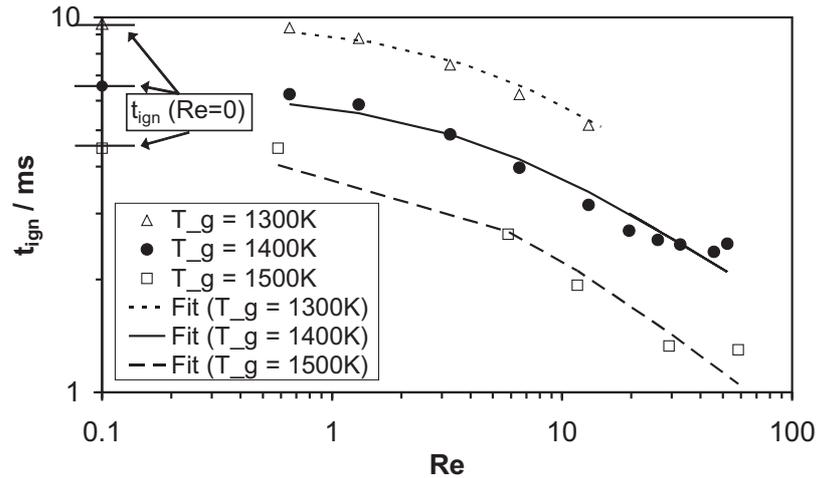
Aufgrund der großen Relevanz der Relativbewegung von Tropfen und umgebender Gasatmosphäre hinsichtlich technischer Systeme, wird hier der Einfluss einer solchen Relativgeschwindigkeit auf den Zündprozess untersucht. Das modellierte System besteht dabei aus einem Tropfen, der von dem umgebenden Gas umströmt wird. Die Reynoldszahl

$$\text{Re} = \frac{v_g \cdot d_D}{\nu_g} \quad (6.1)$$

der untersuchten Konfigurationen ist dabei stets kleiner als 100, so dass von einer laminaren Strömung, die Rotationssymmetrie aufweist, ausgegangen werden kann [13, 41, 89].  $v_g$  bezeichnet hier die Strömungsgeschwindigkeit des Gases,  $d_D$  den Durchmesser des Tropfens und  $\nu_g$  die kinematische Viskosität des Gases. Das modellierte System kann somit als analog zu einem Tropfen, der mit der entsprechenden Geschwindigkeit durch eine ruhende Gasatmosphäre fliegt, angesehen werden. In diesem Modell wird die Verzögerung des Tropfens aufgrund von Reibungskräften nicht berücksichtigt. Die Reibungsterme in den Navier-Stokes Gleichungen sind jedoch sehr wohl berücksichtigt. Lediglich die Geschwindigkeit der äußeren Strömung bleibt zeitlich konstant. Über den Einfluss der Verzögerung aufgrund von Reibungskräften auf den Zündprozess können, bei Kenntnis der Größenordnung der

Verzögerung, mittels Simulationen unter Berücksichtigung einer äußeren Verzögerung bzw. Beschleunigung zuverlässige Aussagen getroffen werden. Eine solche Vorgehensweise wird im Abschnitt 6.3 verfolgt.

Abbildung 6.3 zeigt die Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanoltropfens von der Reynoldszahl der Strömung für drei verschiedene Gastemperaturen. Die untersuchten Reynoldszahlen entsprechen Strömungsgeschwindigkeiten im Bereich von 0.01 bis 10 m/s.



**Abbildung 6.3:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Methanoltropfens von der Reynoldszahl der äußeren Gasströmung ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

Eine deutliche Verringerung der Zündverzugszeit mit steigender Strömungsgeschwindigkeit ist zu erkennen. Eine Verzehnfachung der Strömungsgeschwindigkeit bewirkt dabei eine quantitativ vergleichbare Verkürzung der Zündverzugszeit wie eine Erhöhung der Gastemperatur um 100 K. Des weiteren offenbart der Verlauf der Zündverzugszeiten für die drei unterschiedlichen Gastemperaturen große Ähnlichkeit. Deshalb wurde versucht, den Verlauf der Daten mittels eines einfachen funktionalen Zusammenhangs wiederzugeben. Aufgrund der logarithmischen Skalierung und des Verlaufs der Daten wurde der folgende funktionale Zusammenhang gewählt.

$$t_{ign}(\text{Re}) = t_{ign}(\text{Re} = 0) \cdot (1 + a \cdot \text{Re})^b \quad (6.2)$$

$t_{ign}(\text{Re})$  stellt die Zündverzugszeit in Abhängigkeit der Reynoldszahl dar.  $t_{ign}(\text{Re}=0)$  gibt die Zündverzugszeit des Tropfens in ruhender Gasatmosphäre an.  $a$  und  $b$  sind die zur Anpassung der Fitfunktion an die Daten freien Parameter. Wie man in Abbildung 6.3 erkennen kann, geben die Fitfunktionen gut den Verlauf der Daten wieder. Es ist dabei zu beachten, dass die Zündverzugszeiten für die höchsten dargestellten Reynoldszahlen mit einer größeren Unsicherheit behaftet sind, da in diesen Fällen die Zündung am Rand des Simulationsgebiets stattfindet. Für höhere Reynoldszahlen wurde keine Zündung innerhalb

$T_g$	$a$	$b$
1300 K	0.17	-0.49
1400 K	0.25	-0.41
1500 K	0.29	-0.49

**Tabelle 6.1:** Die Fitparameter  $a$ ,  $b$  für die drei untersuchten Gastemperaturen

des Simulationgebiets, das 20 Tropfendurchmesser betrug, beobachtet. Die erhaltenen Werte für die freien Parameter  $a$  und  $b$ , die in Tabelle 6.1 aufgeführt sind, unterscheiden sich in den drei untersuchten Fällen nur geringfügig.

Besonders die Werte für  $b$  weisen starke Ähnlichkeit auf. Aufgrund der Tatsache, dass bei der Anpassung der Fitfunktion an die Daten nur zwei freie Parameter und die Zündverzugszeiten in ruhender Gasatmosphäre verwendet wurden, scheint ein genereller Trend in den beobachteten Zündverzugszeiten zu existieren. Der erhaltene funktionale Zusammenhang weist zudem eine gewisse Ähnlichkeit mit der Korrelation von Ranz und Marshall auf, die den Einfluss einer äußeren Gasströmung auf das Verdunstungs- bzw. Abbrandverhalten von Tropfen beschreibt [61, 100, 113].

$$\text{Nu, Sh} \propto (1 + c \cdot \text{Re}^{0.5}) \quad (6.3)$$

$$K \propto (1 + c \cdot \text{Re}^{0.5}) \quad (6.4)$$

Das Verdunstungsverhalten wird dabei durch die Nusseltzahl  $\text{Nu}$  und die Sherwoodzahl  $\text{Sh}$ , das Abbrandverhalten durch die Brennkonzante  $K$  beschrieben.  $c$  repräsentiert eine von der Prandtl- bzw. Schmidtzahl abhängige Konstante, die für die untersuchten Fälle als konstant angenommen werden kann. Unter der Annahme, dass es sich bei den physikalischen Transportprozessen um die für die Zündung geschwindigkeitsbestimmenden Prozesse handelt (siehe Kapitel 4, [121, 122]), wäre die Zündverzugszeit des Tropfens  $t_{ign}$  ungefähr proportional zur typischen Zeitskala des physikalischen Transports  $\tau_{\text{trans}}$  und somit proportional zu dem Inversen der Nusseltzahl  $\text{Nu}$  bzw. der Sherwoodzahl  $\text{Sh}$ . Die Ähnlichkeit der Exponenten  $b$  in Tabelle 6.1 zu -0.5 erscheint somit nicht zufällig. Des weiteren deutet der zunehmende Vorfaktor  $a$  mit steigender Temperatur auf den zunehmend geschwindigkeitsbestimmenden Einfluss der Transportprozesse auf den Zündverzug hin. Diese Folgerung erscheint zudem plausibel, da sich die chemische Zeitskala exponentiell mit steigender Temperatur verringert und somit keinen zeitlimitierenden Faktor mehr darstellt.

Unter der Annahme, dass sich die Zündverzugszeit eines Einzeltropfens aus einem Anteil  $\tau_{\text{trans}}$ , der durch den Zündverzug aufgrund physikalischer Transportprozesse, wie Verdunstung des Brennstoffs und Transportprozesse in der Gasphase, verursacht wird, und einem Anteil der chemischen Kinetik  $\tau_{\text{chem}}$  zusammensetzt, lässt sich die Zündverzugszeit als Summe dieser beiden Anteile ausdrücken.

$$t_{ign} = \tau_{chem} + \tau_{trans} \quad (6.5)$$

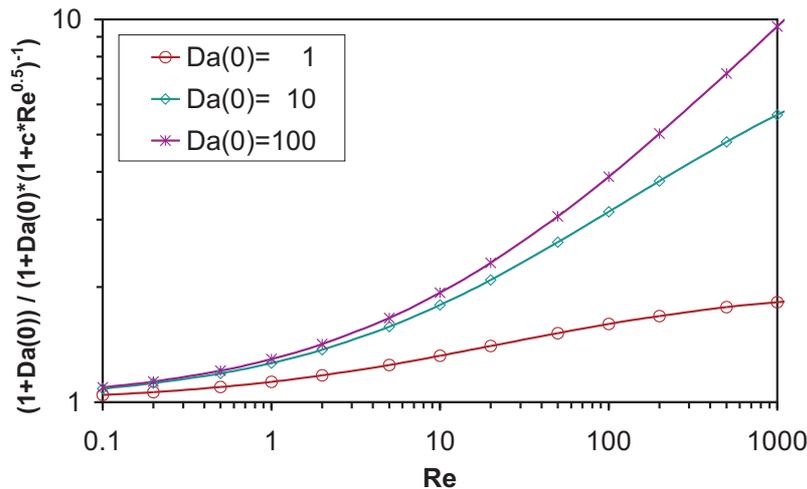
Weist nun die physikalische Zeitskala die oben erwähnte Abhängigkeit von der Reynoldszahl auf, kann die Abhängigkeit der Zündverzugszeit des Tropfens von der Reynoldszahl beschrieben werden durch

$$t_{ign}(Re) = \tau_{chem} + \tau_{trans}(0) \cdot (1 + c \cdot Re^{0.5})^{-1} \quad (6.6)$$

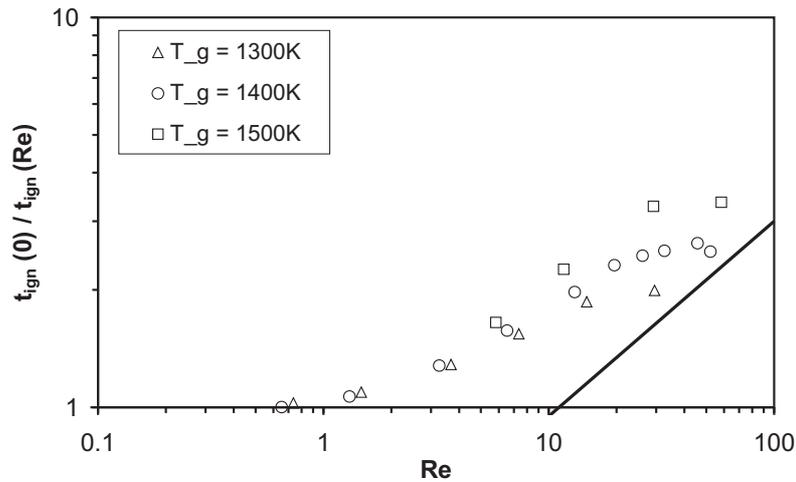
Der Zusatz (0) bezeichnet dabei die entsprechenden Größen im Fall des ruhenden Tropfens. Wird die Zündverzugszeit für den Fall der äußeren Gasströmung  $t_{ign}(Re)$  mittels der Zündverzugszeit des ruhenden Tropfens  $t_{ign}(0)$  normiert, ergibt sich unter Verwendung der Damköhlerzahl  $Da = \tau_{trans}/\tau_{chem}$  für das Verhältnis der Zündverzugszeiten

$$\frac{t_{ign}(0)}{t_{ign}(Re)} = \frac{\tau_{chem} + \tau_{trans}(0)}{\tau_{chem} + \tau_{trans}(0) \cdot (1 + c \cdot Re^{0.5})^{-1}} = \frac{1 + Da(0)}{1 + Da(0) \cdot (1 + c \cdot Re^{0.5})^{-1}} \quad (6.7)$$

In Abbildung 6.4 ist der Verlauf der inversen normierten Zündverzugszeit in Abhängigkeit von der Reynoldszahl für drei verschiedene Damköhlerzahlen dargestellt. Die Damköhlerzahlen wurden zwischen 1 und 100 gewählt, da dieser Bereich als realistisch für die Größenordnung der Damköhlerzahl für die untersuchten Fälle erscheint. Die Größenordnung der Damköhlerzahl kann dabei aus dem Vergleich der Zündverzugszeiten eines Einzeltropfens mit der Zündverzugszeit eines homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches, analog zu den in Abschnitt 4.2 aufgeführten Resultaten, gewonnen werden. Für die Konstante  $c$  wird, der Ranz-Marshall-Korrelation folgend, ein Wert von 0.3 gewählt.



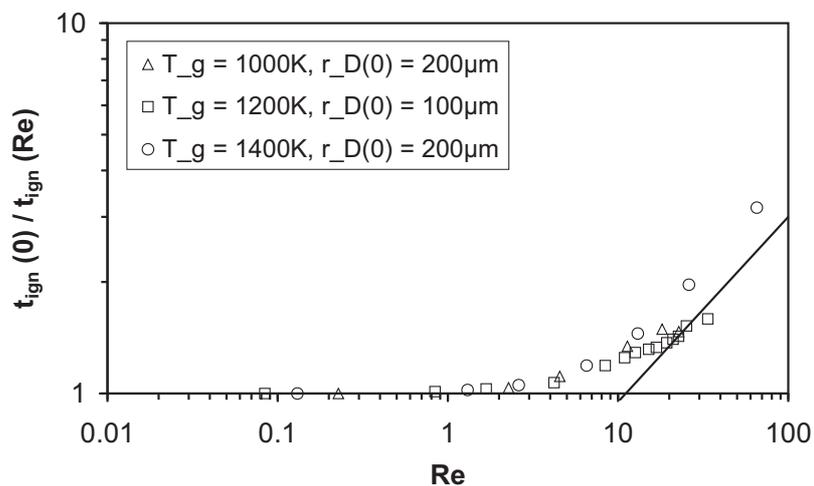
**Abbildung 6.4:** Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit von der Reynoldszahl für verschiedene Damköhlerzahlen



**Abbildung 6.5:** Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit eines Methanoltropfens von der Reynoldszahl ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

Wird für die ermittelten Zündverzugszeiten eines Methanoltropfens die gleiche Auftragung gewählt, erhält man einen qualitativ ähnlichen Verlauf, wie Abbildung 6.5 zeigt.

Neben der qualitativen Übereinstimmung der Abhängigkeit von der Reynoldszahl ist der Einfluss der Damköhlerzahl deutlich zu erkennen. Der stärkere Anstieg der inversen Zündverzugszeit mit zunehmender Reynoldszahl für größere Damköhlerzahlen, den Abbildung 6.4 aufzeigt, ist ebenfalls in Abbildung 6.5 zu erkennen, da die Damköhlerzahl mit zunehmender Gastemperatur zunimmt, wie in Abschnitt 4.2 und 4.4 verdeutlicht wurde.



**Abbildung 6.6:** Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit eines Heptanotropfens von der Reynoldszahl ( $p = 7$  bar)

Abbildung 6.6 zeigt die inversen Zündverzugszeiten eines Heptanotropfens in Abhängigkeit für drei verschiedene Gastemperaturen. Erneut ist ein stärkerer Anstieg der inversen Zünd-

verzugszeit mit zunehmender Damköhlerzahl zu beobachten. Die inversen Zündverzugszeiten für eine Gastemperatur von  $T_g = 1200$  K weisen dabei eine geringere Steigung auf, da für diese Gastemperatur ein geringerer Tropfenradius von  $r_D(0) = 100 \mu\text{m}$  gewählt wurde. Da die Damköhlerzahl für kleinere Tropfen geringere Werte aufweist (siehe Abschnitt 4.4), zeigen die Zündverzugszeiten eine schwächere Abhängigkeit von der Reynoldszahl. Allgemein zeigen zudem die Zündverzugszeiten des Heptantropfens eine schwächere Abhängigkeit von der äußeren Gasströmung als die Zündverzugszeiten des Methanoltropfens, was darüber hinaus auf eine geringere Damköhlerzahl im Fall der Heptantropfen hindeutet. Dieses Verhalten kann mit den unterschiedlichen stöchiometrischen Molenbrüchen der beiden Brennstoffe erklärt werden. Da der stöchiometrische Molenbruch von Methanol mit  $x_{\text{CH}_3\text{OH,stoich}} = 0.123$  einen wesentlich höheren Wert als der stöchiometrische Molenbruch von n-Heptan mit  $x_{\text{C}_7\text{H}_{16,\text{stoich}}} = 0.019$  aufweist, ist für die typische Zeitskala der physikalischen Transportprozesse im Fall des Methanols ein höherer Wert als im Fall des n-Heptans anzunehmen, da bei gleichen Umgebungsbedingungen am Zündort im Fall des Methanols mehr Brennstoff für die Zündung benötigt wird. Somit weist bei gleichen Umgebungsbedingungen die Damköhlerzahl des Methanols einen höheren Wert als die des n-Heptans auf (siehe Gleichung (4.3)).

Für hohe Damköhlerzahlen ergibt sich im Grenzfall hoher Reynoldszahlen für die Abhängigkeit der inversen normierten Zündverzugszeit von der Reynoldszahl aus (6.7)

$$\text{Da} \rightarrow \infty, \text{Re} \rightarrow \infty \text{ (für } \text{Da} \gg (1 + c \cdot \text{Re})^{0.5} \text{)} : \frac{t_{ign}(0)}{t_{ign}(\text{Re})} \rightarrow c \cdot \text{Re}^{0.5} \quad (6.8)$$

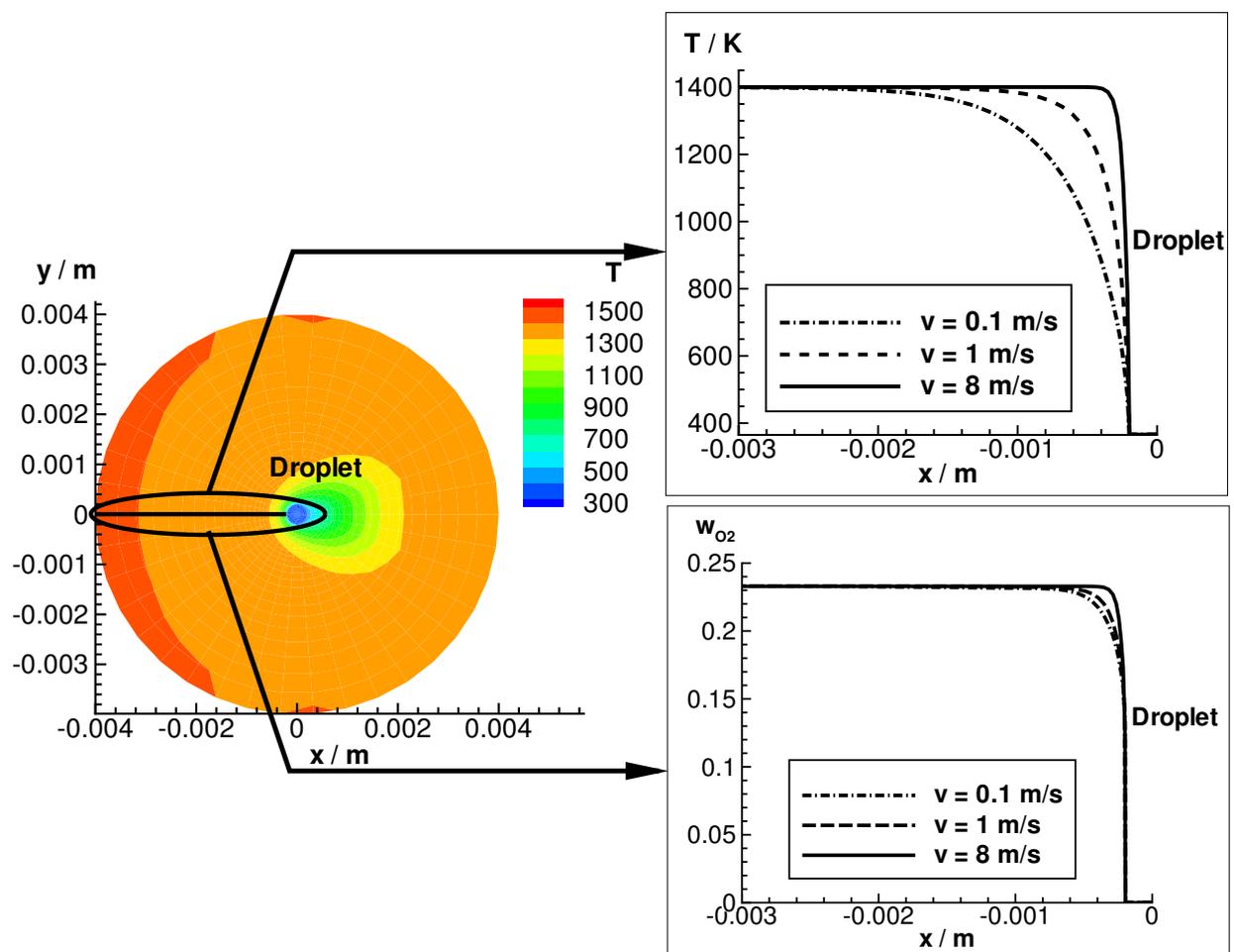
Die in (6.8) beschriebene Asymptote ist in den Abbildungen 6.5 und 6.6 als Linie dargestellt. Für beide Brennstoffe ist das beschriebene asymptotische Verhalten der Zündverzugszeiten für hohe Damköhler- und Reynoldszahlen zu erkennen. Das Abknicken der Zündverzugszeiten für hohe Reynoldszahlen kann dabei auf den Umstand zurückgeführt werden, dass die Bedingung  $\text{Da} \gg (1 + c \cdot \text{Re})^{0.5}$  nicht länger erfüllt ist. Gilt hingegen  $\text{Da} < (1 + c \cdot \text{Re})^{0.5}$ , strebt die inverse Zündverzugszeit für hohe Reynoldszahlen gegen einen konstanten Wert.

$$\text{Re} \rightarrow \infty : \frac{t_{ign}(0)}{t_{ign}(\text{Re})} \rightarrow 1 + \text{Da}(0) \quad (6.9)$$

Eine genauere quantitative Beschreibung der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Reynoldszahl erscheint nicht möglich, da außer den beschriebenen Teilprozessen, wie physikalischer Transport und chemische Kinetik, noch weitere Einflussfaktoren auf den Zündprozess einwirken. Liegt z. B. die anfängliche Tropfentemperatur unterhalb der Kühlgrenztemperatur, wird die Selbstzündung durch die Tropfenaufheizung verzögert. Aufgrund der äußeren Gasströmung erfolgt diese Aufheizung nicht kugelsymmetrisch, wie im Fall eines ruhenden Tropfens. Zudem verhindert die Wechselwirkung der physikalischen und chemischen Prozesse, wie z. B. die Diffusion von Radikalen, eine simple quantitative Beschreibung. Eine Verkürzung der Zündverzugszeit mit steigender Strömungsgeschwindigkeit stellen auch

Wong et al. [141] sowie Dash und Som für moderate Reynoldszahlen [27] im Rahmen numerischer Simulationen fest. Die Resultate wurden mit einer vereinfachten Theorie zur Beschreibung der Selbstzündung weit stromabwärts des Tropfens erhalten.

Um das Verständnis der Detailprozesse, deren Einfluss sowie deren Interaktion zu verbessern, werden im folgenden die mikroskopischen Ursachen, die zur Beschleunigung des Zündprozesses aufgrund einer Verstärkung der äußeren Gasströmung führen, anhand des Brennstoffs Methanol analysiert. Dazu werden die räumlichen Profile der Temperatur und ausgewählter Spezies untersucht.



**Abbildung 6.7:** Räumliche Profile der Temperatur und des Massenbruchs des Sauerstoffs entlang der x-Achse stromaufwärts (gekennzeichnete Linie) ( $T_g = 1400$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200$   $\mu$ m,  $t = 2$  ms)

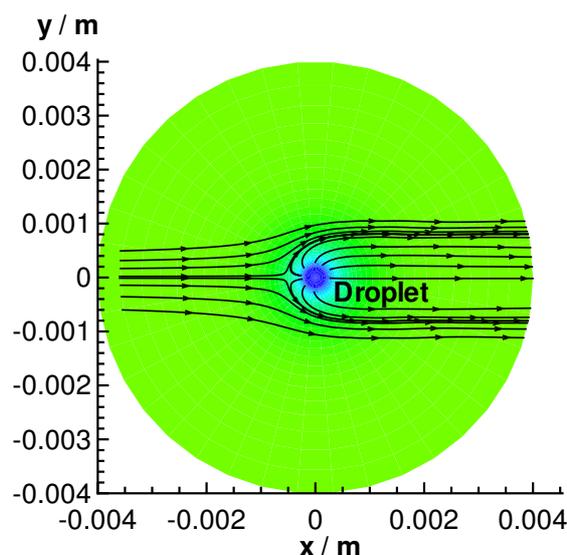
In Abbildung 6.7 kennzeichnet die schwarze Linie den Schnitt durch das Rechengebiet, dessen räumlichen Profile betrachtet werden. Das Temperaturprofil sowie das Profil des Massenbruchs des Sauerstoffs stromaufwärts des Tropfens vor Beginn der Selbstzündung sind für drei unterschiedliche Geschwindigkeiten dargestellt. Für beide Profile ist deutlich

zu erkennen, dass die zunehmende Relativgeschwindigkeit zu stärkeren Gradienten in den Profilen führt. Diese Verstärkung der Gradienten führt zu einer Beschleunigung der diffusiven Prozesse wie Massendiffusion und Wärmeleitung. Eine erhöhte Relativgeschwindigkeit hat somit eine schnellere Vermischung des “kalten“ Brennstoffs Methanol mit der heißen Umgebungsluft zur Folge. Die Ursache des Einflusses der konvektiven Strömung auf die Geschwindigkeit der diffusiven Transportprozesse, wie Massendiffusion und Wärmeleitung, liegt in der Ausbildung einer “Staupunktsströmung“ stromaufwärts des Tropfens, die man in Abbildung 6.8 erkennen kann.

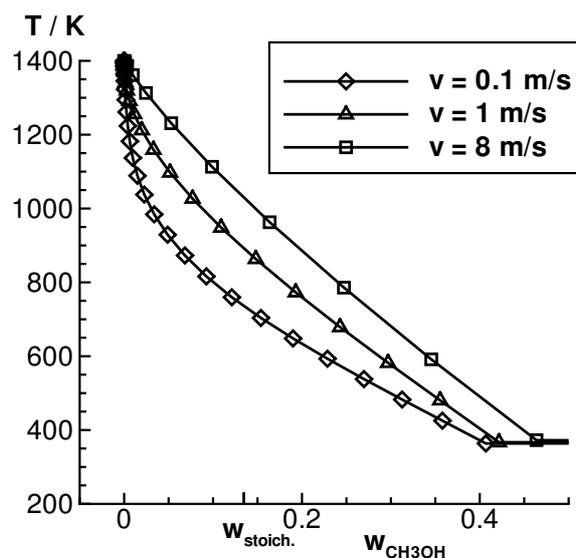
Diese schnellere Vermischung wird auch durch Abbildung 6.9 verdeutlicht. Es ist die Projektion des Zustandsraums auf die Temperatur- $\text{CH}_3\text{OH}$ -Massenbruch-Ebene für den untersuchten Schnitt im Rechengebiet dargestellt. Dies entspricht der lokalen Korrelation von Temperatur und Massenbruch des Methanols für die drei untersuchten Relativgeschwindigkeiten. Am linken Rand der Abbildung ist für einen Massenbruch des Methanols von  $w_{\text{CH}_3\text{OH}} = 0$  der Zustand der Umgebungsluft zu erkennen. Die Punkte am rechten Rand repräsentieren den Zustand an der Oberfläche des Tropfens. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Zustände mit höherer Geschwindigkeit für einen gegebenen Massenbruch des Methanols eine höhere Temperatur aufweisen. Da eine höhere Temperatur eine Beschleunigung der chemischen Kinetik bedeutet, ist diese mit einer Verkürzung der Zündverzugszeit gleichzusetzen. Die bereits getroffene Schlussfolgerung, dass in diesem Temperaturbereich die physikalischen Transportprozesse zeitlimitierend sind (siehe Kapitel [122]), wird durch dieses Resultat ebenfalls bestätigt.

### 6.3 Einfluss einer Relativbeschleunigung auf den Zündprozess

In technischen Systemen werden die Kraftstofftropfen im allgemeinen während ihrer gesamten Lebensdauer ständig beschleunigt oder verzögert. Dies gilt insbesondere in turbulenten Strömungsfeldern. Somit ist die Relativgeschwindigkeit von Tropfen und umgebender Gasphase zeitlich nicht konstant. Der erste Schritt hin zur Simulation selbstzündender Tropfen in einer variierenden Gasströmung ist die Simulation einer Gasströmung mit einer konstanten Beschleunigung. Dies führt zu einem linearen zeitlichen Verlauf der Relativgeschwindigkeit von Tropfen und umgebender Gasphase. Die Modellierung einer Beschleunigung erfolgt durch die Berücksichtigung einer Fernwirkung in der Impulserhaltungsgleichung (2.5). Zudem werden in konsistenter Weise die Randbedingungen modifiziert. Die Größenordnung der Relativbeschleunigung wurde mit  $a = g = 9.81 \text{ m/s}^2$  entsprechend der Erdbeschleunigung gewählt. Da die Richtungen der Relativgeschwindigkeit und -beschleunigung als parallel angenommen werden, lassen sich die Ergebnisse somit auch auf unter dem Einfluss der Gravitation fallende Tropfen übertragen.



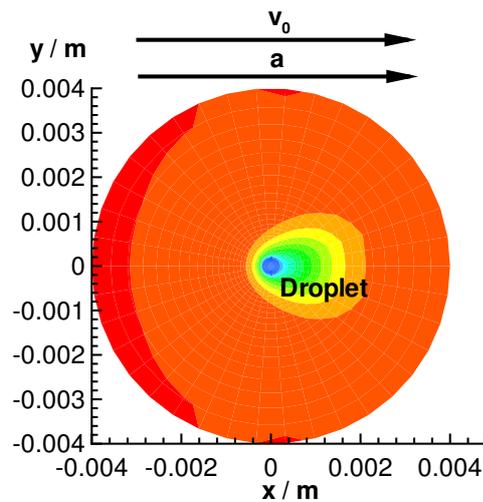
**Abbildung 6.8:** Strömungsfeld einer äußeren Gasströmung in der Umgebung des Tropfens ( $T_g = 1400\text{ K}$ ,  $p = 7\text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200\text{ }\mu\text{m}$ ,  $t = 2\text{ ms}$ )



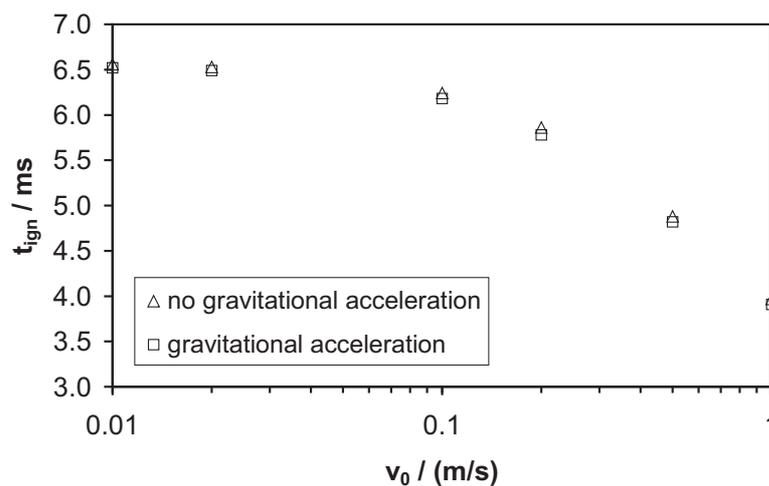
**Abbildung 6.9:** Projektion des Zustandsraums auf die Temperatur- $\text{CH}_3\text{OH}$ -Massenbruch-Ebene ( $T_g = 1400\text{ K}$ ,  $p = 7\text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200\text{ }\mu\text{m}$ ,  $v = 0.1\text{ m/s}$ ,  $t = 2\text{ ms}$ )

In Abbildung 6.10 ist das simulierte System dargestellt. Zur Analyse des Einflusses der Relativbeschleunigung wurden Simulationen mit verschiedenen anfänglichen Relativgeschwindigkeiten durchgeführt, wobei jeweils die Zündung des Tropfens unter Berücksichtigung der Relativbeschleunigung sowie ohne Einfluss einer Beschleunigung simuliert wurden. Die resultierenden Zündverzugszeiten dieser Simulationen sind in Abbildung 6.11 gegenübergestellt.

Wie Abbildung 6.11 zeigt, wird die Zündverzugszeit durch die Relativbeschleunigung nur



**Abbildung 6.10:** Modell des simulierten Systems unter Berücksichtigung einer Relativbeschleunigung von Tropfen und umgebender Gasphase

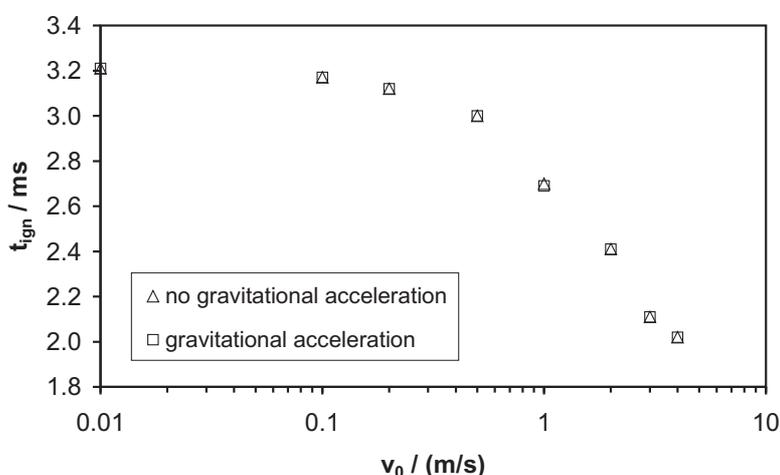


**Abbildung 6.11:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit von Tropfen und Gasphase (mit und ohne Einfluss einer Relativbeschleunigung) (Methanol,  $T_g = 1400$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

unwesentlich verkürzt. Die Variation der Relativgeschwindigkeit weist einen weitaus größeren Einfluss auf die Zündverzugszeit auf. Gegenüber diesem kann der Einfluss der Relativbeschleunigung vernachlässigt werden. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der relativ geringen Änderung der Relativgeschwindigkeit innerhalb der Zeitspanne bis zur Zündung des Tropfens. Eine Beschleunigung in der betrachteten Größenordnung bewirkt z. B. in einem Zeitraum von 7 ms lediglich eine Geschwindigkeitsänderung von

$$\Delta v = a \cdot \Delta t \approx 0.07 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad . \quad (6.10)$$

Vergleicht man diese Geschwindigkeitsänderung mit den untersuchten Anfangsgeschwindigkeiten fällt diese Änderung nur für geringe Geschwindigkeiten ( $v_0 \leq 0.1$  m/s) ins Gewicht. Da für diese Geschwindigkeiten die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit gering ist, führt der Einfluss der Beschleunigung auch für geringe Geschwindigkeiten zu keiner signifikanten Verkürzung der Zündverzugszeit. Da für höhere Geschwindigkeiten als 1 m/s die relative Änderung der Geschwindigkeit noch geringer wäre, wurde auf die Untersuchung dieser Fälle verzichtet. Eine Übertragung der Resultate auf Fälle, in denen die Relativgeschwindigkeit und -beschleunigung nicht parallel sind, erscheint möglich, da die relative Änderung der Momentangeschwindigkeit für den untersuchten Fall maximal ist.



**Abbildung 6.12:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Relativgeschwindigkeit von Tropfen und Gasphase (mit und ohne Einfluss einer Relativbeschleunigung) (n-Heptan,  $T_g = 1200$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 100$   $\mu$ m)

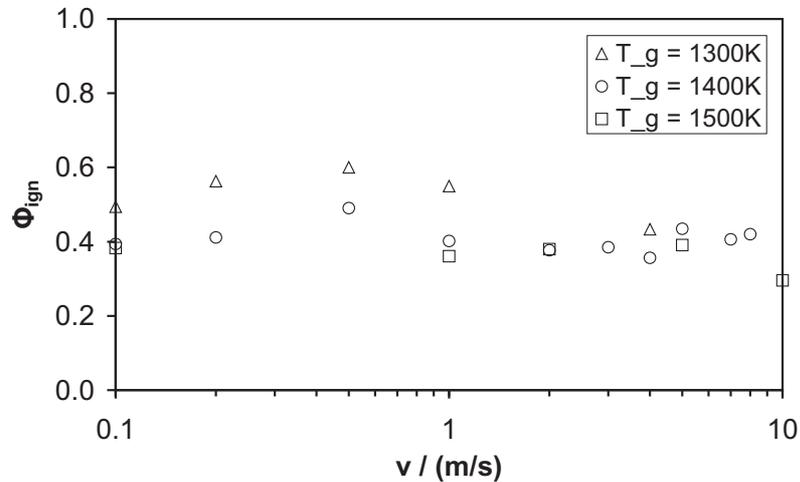
Abbildung 6.12 zeigt die Analogie der Ergebnisse für Heptantropfen. Auch hier ist der Einfluss der Relativbeschleunigung gegenüber dem Einfluss der anfänglichen Relativgeschwindigkeit vernachlässigbar. Dieses Verhalten ist ebenfalls auf die oben beschriebenen Ursachen zurückzuführen.

Ein geringer Einfluss einer Relativbeschleunigung auf die Zündverzugszeit wurde für den Fall der Gravitation bereits experimentell für diverse Brennstoffe (n-Heptan, n-Hexadekan, Benzol) von Faeth und Olson [38], Tanabe et al. [129] und Schnaubelt et al. [107] festgestellt.

## 6.4 Analyse der Bedingungen am Zündort

In Anknüpfung an die Resultate aus Abschnitt 4.9 wird auch hier der lokale Zustand des Zündorts analysiert. Zur Charakterisierung wird dazu das lokale Äquivalenzverhältnis  $\phi$

herangezogen. Es wird am Beispiel des Brennstoffs Methanol untersucht, ob das lokale Äquivalenzverhältnis eine Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit aufweist.



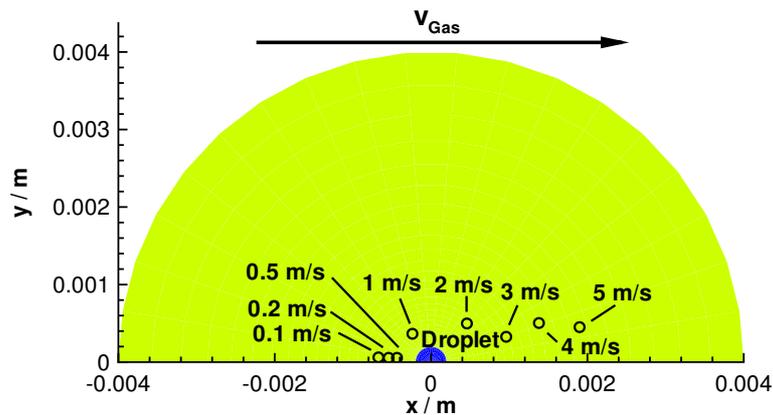
**Abbildung 6.13:** Abhängigkeit des lokalen Äquivalenzverhältnisses am Zündort von der Relativgeschwindigkeit ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ )

In Abbildung 6.13 ist das Äquivalenzverhältnis am Zündort bei unterschiedlichen Relativgeschwindigkeiten für drei verschiedene Gastemperaturen dargestellt. Trotz einer Variation der Geschwindigkeit von zwei Größenordnungen (von 0.1 m/s bis 10 m/s) lässt sich kein Trend in den ermittelten Äquivalenzverhältnissen erkennen. Vielmehr liegen alle Äquivalenzverhältnisse in einem Bereich von 0.3 bis 0.6. Dies bedeutet, dass bei den gegebenen Umgebungsbedingungen die Zündung unter mageren Bedingungen stattfindet, wie bereits in Abschnitt 4.9 festgestellt wurde. Auch bei Wong et al. [141], die numerische Simulationen mit einem vereinfachten Modell durchgeführt haben, tritt die Selbstzündung weit stromabwärts des Tropfens unter lokal mageren Bedingungen auf.

Auch wenn das lokale Äquivalenzverhältnis durch eine Variation der Relativgeschwindigkeit nicht merklich beeinflusst wird, so wirkt sich die Größe der Relativgeschwindigkeit doch wesentlich auf den Zündprozess selbst aus. Der Ursprung des Zündprozesses, der Zündort, wandert mit zunehmender Relativgeschwindigkeit kontinuierlich stromabwärts. Dieses Phänomen wird in Abbildung 6.14 für einen Methanoltropfen veranschaulicht.

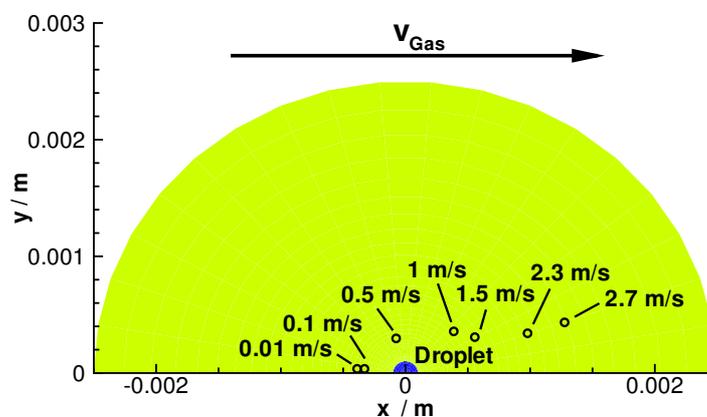
Bei geringen Geschwindigkeiten findet die Zündung im Staupunkt der Strömung stromaufwärts des Tropfens statt. Mit zunehmender Relativgeschwindigkeit wandert der Zündort am Tropfen vorbei stromabwärts des Tropfens. Unter der Annahme, dass sich im Staupunkt der Strömung früh ein zündfähiges Gemisch bildet und das Volumenelement dieses Gemisches, weitgehend unbeeinflusst von diffusiven Prozessen, mit der konvektiven Strömung fortbewegt wird, lässt sich die erhaltene Verschiebung des Zündorts erwarten.

Auch der Brennstoff n-Heptan weist das gleiche Verhalten auf, wie Abbildung 6.15 zeigt. Bei geringen Relativgeschwindigkeiten findet die Zündung ebenfalls stromaufwärts des Tropfens



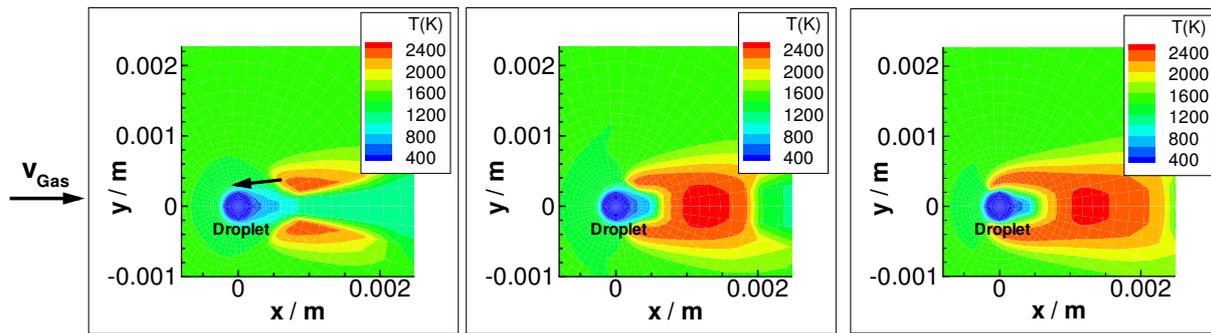
**Abbildung 6.14:** Verschiebung der Lage des Zündorts mit zunehmender Relativgeschwindigkeit (Methanol,  $T_g = 1400\text{ K}$ ,  $p = 7\text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200\ \mu\text{m}$ )

statt und wandert mit zunehmender Geschwindigkeit stromabwärts des Tropfens. Aufgrund der unterschiedlichen Brennstoffe und Längenskalen ist jedoch der quantitative Zusammenhang zwischen Geschwindigkeit und Zündort verschieden.



**Abbildung 6.15:** Verschiebung der Lage des Zündorts mit zunehmender Relativgeschwindigkeit (n-Heptan,  $T_g = 1200\text{ K}$ ,  $p = 7\text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 100\ \mu\text{m}$ )

Auch wenn die Selbstzündung z. T. stromabwärts des Tropfens stattfindet, bildet sich dennoch anschließend eine den Tropfen einhüllende Flamme aus. Die Bildung einer solchen einhüllenden Flamme im Fall einer Zündung stromabwärts des Tropfens ist verbunden mit einer Fortpflanzung der Flamme stromaufwärts entgegen der äußeren Strömung der umgebenden Gasphase. Diese Fortpflanzung ist auch von technischer Relevanz, da die Selbstzündung in den meisten technischen Sprays stromabwärts eines Tropfens initiiert wird [141]. Abbildung 6.16 verdeutlicht dieses Verhalten anhand der Zündung eines Methanoltropfens. Auf der linken Seite ist das zweidimensionale Temperaturprofil am Ende der Zündung ge-



**Abbildung 6.16:** Fortpflanzung der Reaktionszone nach der Zündung stromabwärts des Tropfens (Methanol,  $T_g = 1400$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $v = 3$  m/s, links:  $t_1 = 2.80$  ms, Mitte:  $t_2 = 2.92$  ms, rechts:  $t_3 = 3.04$  ms)

Brennstoff ( $T_g$ )	$v_0$ / (m/s)	$v_{ign}$ / (m/s)
n-Heptan	0.5	2.63
(1000 K)	0.8	2.5
n-Heptan	1.3	4.36
(1200 K)	1.5	3.67
	1.8	3.95
	2.0	4.18
	2.3	4.38
	2.5	3.69
	2.7	3.91
Methanol	3.0	6.01
(1400 K)	4.0	5.53
	5.0	6.32

**Tabelle 6.2:** Fortpflanzungsgeschwindigkeiten der Reaktionszone nach der Zündung ( $p = 7$  bar)

zeigt. Der Pfeil zeigt die Richtung der nachfolgenden Fortpflanzung der Flamme an, die in den beiden weiteren Bildern dargestellt ist. Auf der rechten Seite ist das Temperaturprofil zu dem Zeitpunkt dargestellt, wenn die Flamme die nähere Umgebung des Tropfens erreicht. Anschließend pflanzt sich die Flamme weiter stromaufwärts fort, so dass eine Flamme entsteht, die den Tropfen einhüllt. Die Geschwindigkeit dieser Flammenfortpflanzung wird im folgenden für die beiden Brennstoffe Methanol und n-Heptan bestimmt. Diese Fortpflanzungsgeschwindigkeit der Flamme darf dabei nicht mit der Flammengeschwindigkeit einer brennenden Flamme identifiziert werden. Vielmehr stellt sie die Geschwindigkeit dar, mit der die Reaktionszone nach der Zündung stromaufwärts wandert.

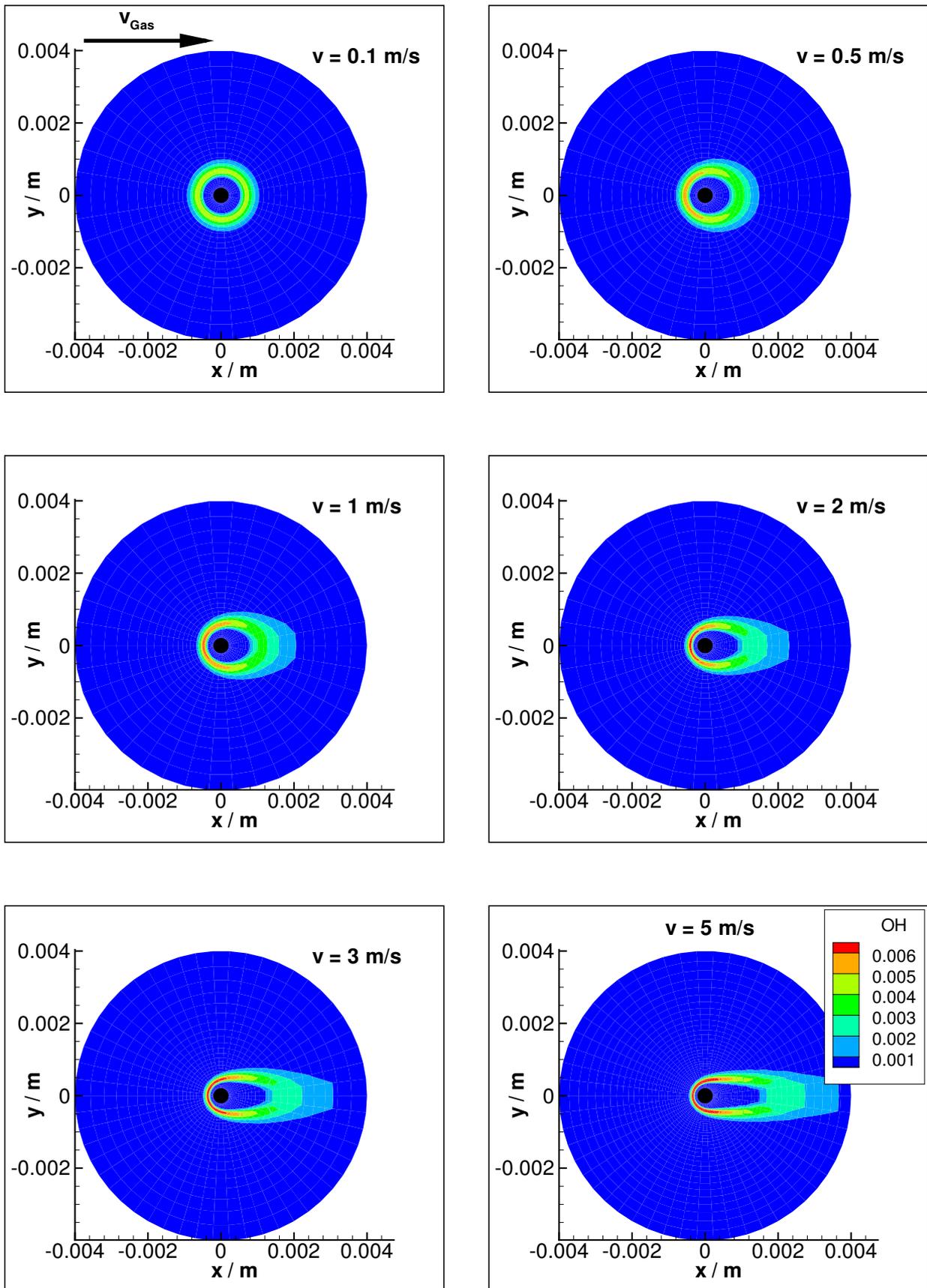
In Tabelle 6.2 sind die ermittelten Geschwindigkeiten der Flammenfortpflanzung  $v_{ign}$  für die beiden Brennstoffe Methanol und n-Heptan bei verschiedenen Gastemperaturen  $T_g$  und Relativgeschwindigkeiten  $v_0$  dargestellt. Whang et al. haben das diskutierte Phänomen ex-

perimentell für die Brennstoffe n-Heptan und n-Hexadekan untersucht [139]. Entsprechend der Vorgehensweise von Whang et al. [139] wurden auch hier die Fortpflanzungsgeschwindigkeiten durch die Addition der jeweiligen Strömungsgeschwindigkeit zu den beobachteten Geschwindigkeiten ermittelt. Aufgrund der Beschleunigung der physikalischen Transportprozesse sowie der chemischen Kinetik ist in allen Fällen eine Zunahme der Geschwindigkeit mit steigender Temperatur zu beobachten. Eine eindeutige Abhängigkeit der Fortpflanzungsgeschwindigkeit von der Relativgeschwindigkeit kann nicht festgestellt werden. Die Größenordnung der hier beobachteten Fortpflanzungsgeschwindigkeiten steht ebenfalls mit den von Whang et al. ermittelten Werten im Einklang. Nichtsdestotrotz weisen die hier für den Brennstoff n-Heptan bestimmten Geschwindigkeiten, besonders bei höheren Gastemperaturen, niedrigere Werte im Vergleich zu den Resultaten von Whang et al. auf. Neben den Unsicherheiten in der Bestimmung der Fortpflanzungsgeschwindigkeit sowie der Gastemperatur sind dafür vornehmlich die unterschiedlichen Umgebungsbedingungen von Simulation und der Untersuchung von Whang et al. verantwortlich. Zum einen begünstigt die im Vergleich zur Simulation höhere Reynoldszahl bei den Experimenten von Whang et al. die Fortpflanzung der Flammenfront, zum anderen sorgt der niedrigere Druck bei Whang et al. (1bar) aufgrund der Druckabhängigkeit der Diffusionskoeffizienten ( $D \propto 1/p$  [12, 138]) für eine erhöhte Fortpflanzungsgeschwindigkeit im Vergleich zu den hier durchgeführten Simulationen. Aus diesem Grund kann zusammenfassend eine zufriedenstellende Übereinstimmung der erhaltenen Ergebnisse mit den Resultaten von Whang et al. festgestellt werden. Die Resultate von Raghavan et al., die im Rahmen ihrer numerischen Untersuchungen des Abbrandes von Methanoltropfen den Selbstzündungsprozess eines Methanoltropfens simuliert haben, weisen ebenfalls nach der Zündung eine Fortpflanzung der Flamme entgegen der Strömungsrichtung auf [95]. Das Phänomen ist von Raghavan et al. jedoch nicht im Detail untersucht worden.

## 6.5 Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf die Flammenstruktur

Im Gegensatz zum Fall der ruhenden Gasumgebung hat die Flamme unter dem Einfluss einer äußeren Gasströmung keine sphärische Struktur mehr. Die Stärke dieser Gasströmung verschiebt nicht nur die Lage des Zündorts, wie in Abschnitt 6.4 gezeigt wurde, sondern auch die Ausprägung und Ausdehnung der Reaktionszone wird von der äußeren Gasströmung wesentlich beeinflusst. Der Einfluss dieser Gasströmung wird in diesem Abschnitt anhand des Brennstoffs Methanol untersucht.

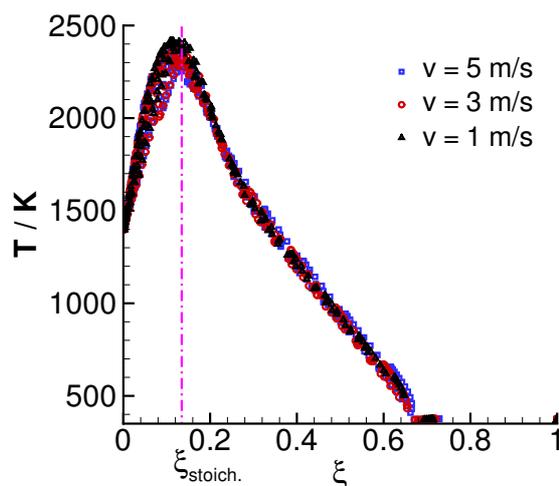
In Abbildung 6.17 sind die Auswirkungen einer zunehmenden Strömungsgeschwindigkeit auf die Flammenstruktur deutlich sichtbar. Der Ort der maximalen OH-Konzentration definiert dabei die Flammenposition. Das umgebende Gas strömt von links nach rechts. Die



**Abbildung 6.17:** Veränderung der Flammenstruktur bei ansteigender Geschwindigkeit der Gasströmung (Methanol,  $T_g = 1400$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $t = 9$  ms, Strömung von links nach rechts)

Flamme verliert mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit ihre sphärische Form. Die Ausdehnung der Flamme in x-Richtung wird somit mit zunehmender Geschwindigkeit größer. Gleichzeitig findet eine Verschmälerung der Flammenausdehnung in y-Richtung statt. Bemerkenswert ist darüber hinaus die Zunahme des Maximums der OH-Konzentration. Die Ursache dafür liegt in der Beschleunigung der diffusiven Prozesse mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit (siehe Abschnitt 6.2), die eine schnellere Vermischung des Brennstoffs mit der Umgebungsluft zur Folge hat. Die Diffusion von Radikalen hat bei der untersuchten Gastemperatur keinen signifikanten Einfluss, da die chemische Kinetik auf einer wesentlich kürzeren Zeitskala als die physikalischen Transportprozesse abläuft (siehe Abschnitt 4.4 und 6.2).

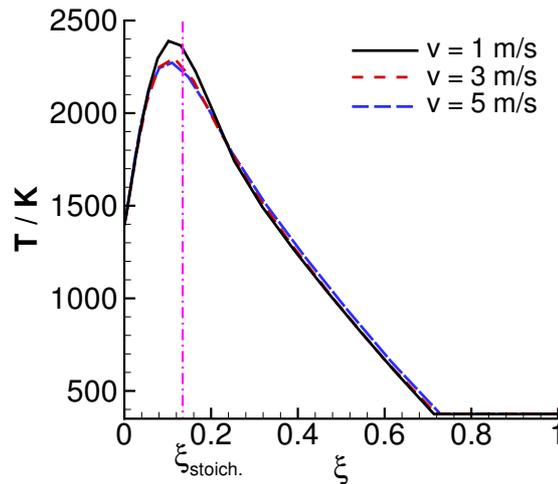
Dieses Maximum tritt dabei im Staupunkt der Strömung stromaufwärts des Tropfens auf. Das Maximum der OH-Konzentration stromabwärts des Tropfens sinkt hingegen mit zunehmender Geschwindigkeit. Wie man in Abbildung 6.17 erkennen kann und wie bereits in Abschnitt 4.10 erwähnt wurde, wird der Tropfen von einer nicht-vorgemischten Flamme umgeben.



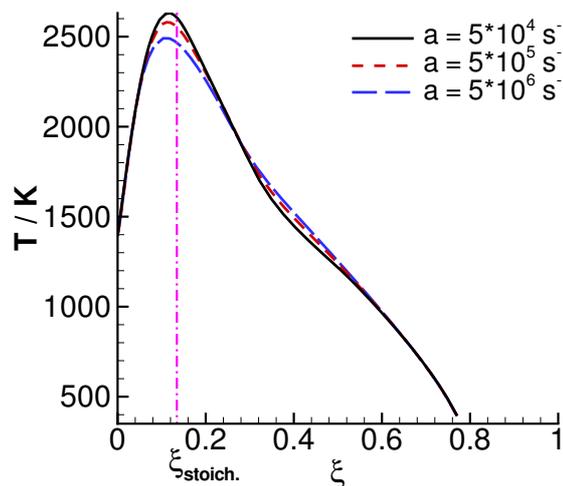
**Abbildung 6.18:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten ( $T_g = 1400\text{ K}$ ,  $p = 7\text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200\text{ }\mu\text{m}$ ,  $t = 9\text{ ms}$ )

Abbildung 6.18 zeigt die Abhängigkeit der lokalen Temperatur vom Mischungsbruch für drei verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten. Wie man erkennen kann, beschreiben die Zustände bei den einzelnen Geschwindigkeiten keine einzelne Linie. Vielmehr weisen die Zustände für einen bestimmten Mischungsbruch eine Temperaturvariation von bis zu 300 K auf. Diese Variation lässt sich auf die unterschiedlichen lokalen Streckungen zurückführen, die aus dem Strömungsfeld, das den Tropfen umgibt, resultieren. Trotz dieser Variation erscheint die Beschreibung der Flamme durch eine simple Abhängigkeit der Temperatur

vom Mischungsbruch in erster Näherung möglich. Darüber hinaus lässt Abbildung 6.18 den Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Temperaturverlauf erkennen. Um eine eingehendere Betrachtung dieses Einflusses zu ermöglichen, sind in Abbildung 6.19 die Temperaturverläufe über dem Mischungsbruch entlang der x-Achse stromaufwärts entsprechend Abbildung 6.7 für die unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten aufgetragen.



**Abbildung 6.19:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Methanol/Luft-Flamelets für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten stromaufwärts des Tropfens ( $T_g = 1400$  K,  $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $t = 9$  ms)



**Abbildung 6.20:** Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch eines Gegenstrom-Flamelets für verschiedene Streckungsraten (Methanol,  $p = 7$  bar)

Eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeiten hat eine Absenkung der maximalen Flammentemperatur zur Folge. Diese Absenkung entspricht der typischen Absenkung der Flam-

menttemperatur eines Flamelets mit zunehmender Streckungsrate [91]. Die Zunahme der lokalen Streckung ist dabei eine Folge der Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit. Die Abnahme der Flammentemperatur mit zunehmender Streckungsrate  $a$  ist ebenfalls in Abbildung 6.20 dargestellt. Die Abbildung zeigt die Temperaturverläufe gestreckter laminarer Gegenstromflammen, wobei die Ströme zum einen aus reiner Luft mit einer Temperatur von 1400 K, zum anderen aus einem gasförmigen Methanol/Luft-Gemisch (entsprechend dem Mischungsbruch an der Tropfenoberfläche) mit einer Temperatur von 400 K besteht. Abbildung 6.20 lässt dieselbe qualitative Abhängigkeit des Temperaturverlaufs von der Streckungsrate wie von der Strömungsgeschwindigkeit in Abbildung 6.19 erkennen. Zusammenfassend ergibt sich, dass bei der Erstellung der Flamelet-Bibliotheken für Tropfenflammen eine weitere Variable in Form der Relativgeschwindigkeit berücksichtigt werden muss, falls eine Relativbewegung zwischen Tropfen und umgebender Gasatmosphäre besteht. Eine Modellierung von (turbulenten) Sprayflammen mit Hilfe von Flamelets unter Hinzunahme einer weiteren Variablen, die die Relativbewegung von Tropfen und Gasphase beschreibt (wie z. B. der Relativgeschwindigkeit), erscheint dennoch in erster Näherung möglich (siehe Seite 124).



# Kapitel 7

## Modellierung der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels

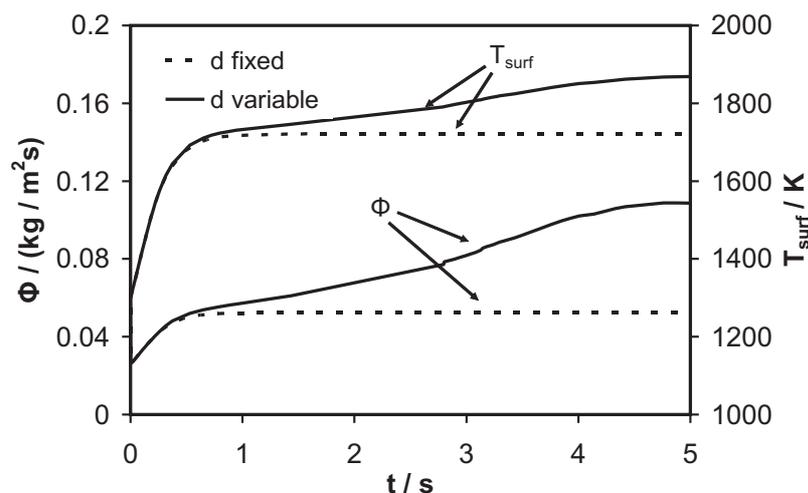
Wie schon in Kapitel 2 erwähnt, kann das vorgestellte Modell auch verwendet werden, um den Abbrand eines Kohlenstoffpartikels zu simulieren. Es bestehen jedoch im Fall der Verbrennung von Kohlenstoffpartikeln grundlegende Unterschiede in den an der Phasengrenze ablaufenden physikalischen und chemischen Detailprozesse im Vergleich zu der Verbrennung von Brennstofftropfen. Während bei der Verbrennung von Brennstofftropfen der flüssige Brennstoff verdunstet, und die Verbrennungsreaktionen ausschließlich in der Gasphase stattfinden, verliert das Kohlenstoffpartikel aufgrund von Oberflächenreaktionen des festen Kohlenstoffs mit gasförmigen Spezies, wie z. B. Sauerstoff, an Masse. Der nicht-reaktive Phasenübergang des Kohlenstoffs durch Schmelzen und anschließendes Verdunsten (bzw. Sublimation) spielt bei den untersuchten Bedingungen aufgrund der hohen Schmelztemperatur des Kohlenstoffs [126] keine Rolle. Darüber hinaus muss im Gegensatz zu Brennstofftropfen aufgrund der hohen Temperatur des Kohlenstoffpartikels beim Abbrand die Emission von Wärmestrahlung an der Partikeloberfläche berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 2.1.2). Analog zu den Studien der Zündung und Verbrennung von Kraftstofftropfen soll auch hier der Einfluss verschiedener Umgebungsparameter auf den Verbrennungsprozess untersucht werden. Im Fall des Kohlenstoffpartikels wird der Verbrennungsprozess bzw. Verbrennungsfortschritt durch die Oberflächentemperatur sowie die Brennrate des Partikels charakterisiert. Im folgenden wird die Abhängigkeit dieser Größen von dem momentanen Partikelradius, dem Wärmestrahlungsverlust des Partikels, dem Umgebungsdruck sowie der Wasser- und der Sauerstoffkonzentration der umgebenden Gasphase ermittelt. Dadurch soll das Verständnis des Abbrandverhaltens von Kohlenstoffpartikeln verbessert werden. Des weiteren können die den Vorgang bestimmenden physikalischen und chemischen Detailprozesse identifiziert werden.

Das betrachtete Partikel repräsentiert ein nicht poröses Graphitpartikel, das aus 100 % Kohlenstoff besteht. Im betrachteten Temperaturbereich werden die Dichte mit  $1800 \text{ kg/m}^3$  [145]

und die Wärmeleitfähigkeit mit  $168 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$  [126] als konstant angenommen. Die Simulationen wurden mit zwei verschiedenen Oberflächenreaktionsmechanismen durchgeführt. Der Mechanismus von Bradley et al. [15] weist dabei mit 10 chemischen Spezies und 6 Oberflächenreaktionen einen höheren Detaillierungsgrad auf und wird im folgenden mit MECH1 bezeichnet. MECH2 repräsentiert den Mechanismus von Libby und Blake [64] und umfasst lediglich 6 chemische Spezies und 3 Oberflächenreaktionen. Es wurden Simulationen des instationären Abbrands eines Kohlenstoffpartikels in einer ruhenden Gasatmosphäre durchgeführt. Dabei wird von einem Partikel ausgegangen, das sich zu Beginn der Simulation im thermischen Gleichgewicht mit der umgebenden heißen Gasphase befindet.

## 7.1 Einfluss des Partikelradius

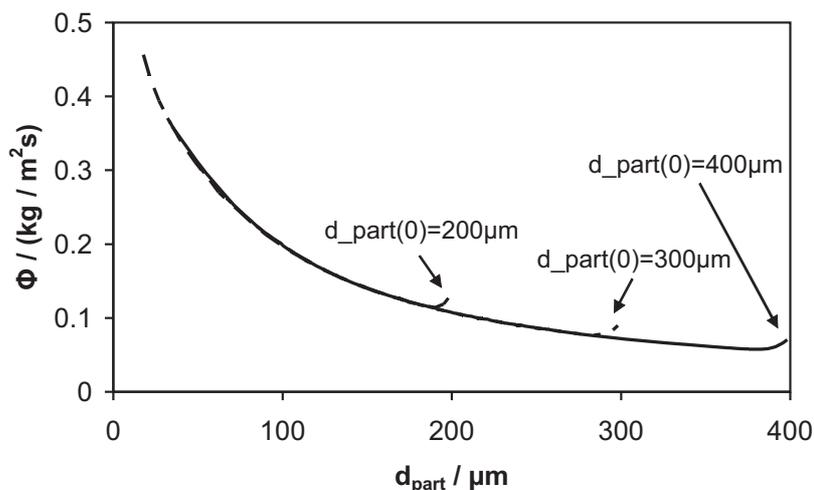
Viele frühere numerische Untersuchungen des Abbrandverhaltens eines Kohle-, Graphit- oder Kohlenstoffpartikels gehen von einem stationären Abbrand des Partikels aus [18, 46, 64, 78]. Es zeigt sich jedoch, dass charakteristische Größen des Verbrennungsprozesses, wie Oberflächentemperatur oder Brennrate, von dem Partikelradius abhängen [18]. Zeitabhängige instationäre Simulationen dieses Verbrennungsprozesses haben ebenfalls gezeigt, dass die Annahme der Stationarität des Partikelradius kritisch ist [62]. Die Ursache dafür liegt in dem Umstand, dass aufgrund des Abbrands der Partikelradius mit der Zeit abnimmt, was zu einer Veränderung der typischen Längenskalen des Systems führt. Da physikalische Transportprozesse beim Abbrand des Partikels einen signifikanten Einfluss haben, variieren somit auch die charakteristischen Größen des Verbrennungsprozesses. Zur Verdeutlichung dieses Phänomens zeigt Abbildung 7.1 die zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur  $T_{surf}$  und der Brennrate  $\phi$ .



**Abbildung 7.1:** Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur und der Brennrate ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1400 \text{ K}$ ,  $r_{part}(0) = 250 \mu\text{m}$ ,  $2\% \text{ H}_2\text{O}$ )

Die durchgezogenen Linien zeigen die  $T_{surf}$  und  $\phi$  für eine instationäre Simulation, wohingegen die gestrichelte Linie die zeitliche Entwicklung der Größen für eine Simulation mit konstantem Partikelradius bzw. -durchmesser zeigt. Dazu wurde bei identischen Bedingungen lediglich die Größe und somit der Radius des Partikels künstlich fixiert. Wie man erkennen kann, unterscheiden sich die Ergebnisse der beiden Fällen deutlich. Für einen fixen Partikelradius erreichen sowohl die Oberflächentemperatur als auch die Brennrate nach anfänglicher Aufheizung und Zündung des Partikels nach 0.5 s konstante Werte. Wird der Partikelradius hingegen nicht konstant gehalten, kann kein stationäres Verhalten der Oberflächentemperatur und der Brennrate festgestellt werden. Die Annahme der Quasistationarität muss somit als sehr kritisch angesehen werden.

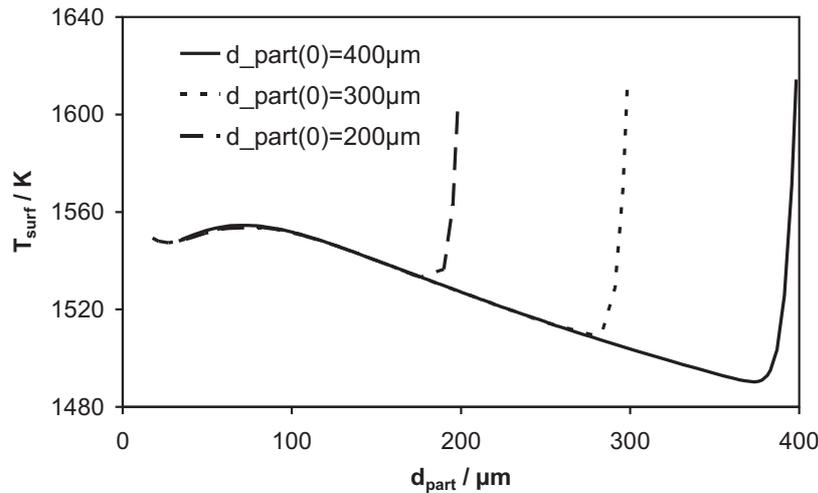
Zur Klärung der Frage, ob die zeitliche Variation der untersuchten Größen lediglich auf eine Variation des Partikelradius zurückgeführt werden kann, wird im folgenden die Abhängigkeit der charakteristischen Größen vom Partikelradius bzw. -durchmesser untersucht. Dazu wurden instationäre Simulationen mit drei verschiedenen Anfangsdurchmessern des Partikels ( $d_{part}(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $d_{part}(0) = 300 \mu\text{m}$ ,  $d_{part}(0) = 400 \mu\text{m}$ ) bei identischen Umgebungsbedingungen durchgeführt. Abbildung 7.2 zeigt die Abhängigkeit der Brennrate vom momentanen Partikeldurchmesser für drei verschiedene Simulationen.



**Abbildung 7.2:** Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser für drei verschiedene Anfangsdurchmesser ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ , 12 %  $\text{O}_2$ , 72 %  $\text{N}_2$ , 16 %  $\text{H}_2\text{O}$ )

Aufgrund der Abnahme des Partikeldurchmessers verläuft die zeitliche Evolution der Kurven von rechts nach links. Nach jeweils einer kurzen transienten Anfangsphase entsprechen alle drei Trajektorien einander. Dieses Verhalten legt den Schluss nahe, dass die Brennrate des Abbrands des Kohlenstoffpartikels lediglich vom momentanen Partikelradius abhängig und unabhängig von der Vorgeschichte des Partikels ist. Wie gezeigt hat dieses Verhalten auch unter instationärer Modellierung des Partikelabbrands Bestand.

Abbildung 7.3 zeigt die entsprechende zeitliche Entwicklung der Oberflächentemperatur des



**Abbildung 7.3:** Abhängigkeit der Oberflächentemperatur vom Partikeldurchmesser für drei verschiedene Anfangsdurchmesser ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ , 12 %  $\text{O}_2$ , 72 %  $\text{N}_2$ , 16 %  $\text{H}_2\text{O}$ )

Partikels in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser. Es lässt sich dasselbe Verhalten wie im Fall der Brennrate in Abbildung 7.2 erkennen. Nach einer kurzen transienten Anfangsphase beschreiben die drei Trajektorien der verschiedenen Anfangsdurchmesser dieselbe Abhängigkeit der Oberflächentemperatur vom Partikeldurchmesser. Die Untersuchung der jeweiligen Zeiten zeigt, dass diese Anfangsphasen zu der in Abbildung 7.1 beschriebenen initialen Entwicklung der charakteristischen Partikelgrößen äquivalent sind. Dieses Ergebnis bestärkt die obige Feststellung, dass die charakteristischen Größen des Brennverhaltens lediglich vom momentanen Partikelradius abhängen.

Die beobachtete Trajektorie der Brennrate offenbart dabei eine Form ähnlich einer Hyperbel. Da für die Brennrate  $\phi$

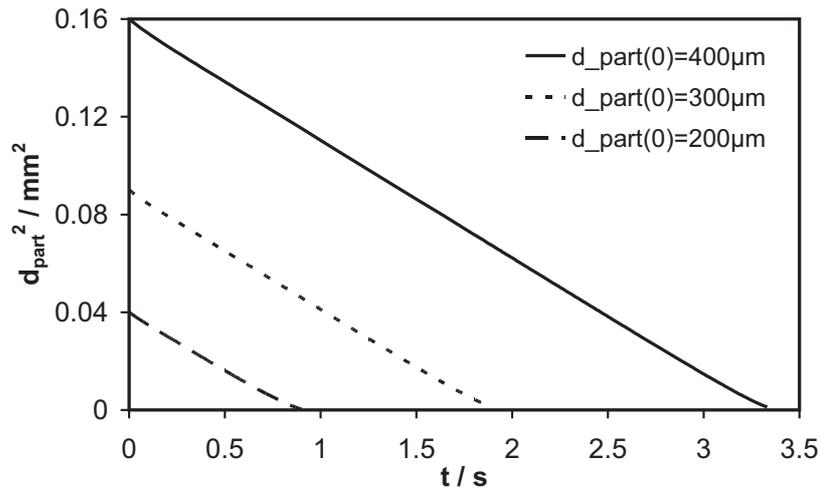
$$\phi = \frac{1}{4\pi r^2} \cdot \frac{dm}{dt} = \frac{\rho}{8} \cdot \frac{K}{r} \quad (7.1)$$

( $m$  bezeichnet die Masse,  $r$  den Radius des Partikels) gilt, bedeutet eine hyperbolische Form der Trajektorie der Brennrate  $\phi$  in Abbildung 7.2 eine zeitliche Konstanz der Größe  $K$ . Bei  $K$  handelt es sich dabei um die Brennkonzstante, den Proportionalitätsfaktor des  $d^2$ -Gesetzes

$$d^2 = d_0^2 - Kt \quad . \quad (7.2)$$

Das  $d^2$ -Gesetz beschreibt die zeitliche Evolution des Tropfendurchmessers eines stationär verdunstenden Tropfens [60, 138].

Abbildung 7.4 verdeutlicht die Analogie und die Gültigkeit der beschriebenen Gesetzmäßigkeit. Der zeitliche Verlauf des Quadrats des Partikeldurchmessers weist für alle drei Fälle eine Gerade auf und zeigt somit die Gültigkeit des  $d^2$ -Gesetzes. Auch wenn sich die



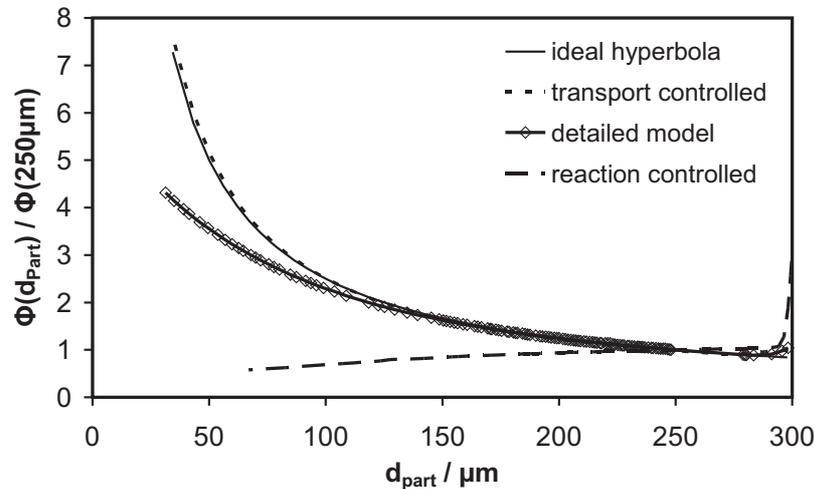
**Abbildung 7.4:** Zeitliche Evolution des Partikeldurchmessers ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ , 12 %  $\text{O}_2$ , 72 %  $\text{N}_2$ , 16 %  $\text{H}_2\text{O}$ )

zeitlichen Verläufe des Durchmessers eines brennenden Kohlenstoffpartikels und eines stationär verdunstenden Tropfens durch das  $d^2$ -Gesetz beschreiben lassen, liegen die Ursachen in unterschiedlichen physikalischen Prozessen. Im Fall eines Tropfens, der sich mit seiner Umgebung im Phasengleichgewicht befindet und somit die Kühlgrenztemperatur aufweist, wird die zeitliche Evolution des Durchmessers durch den Abtransport der verdunstenden Spezies von der Tropfenoberfläche bestimmt. Aufgrund der Gültigkeit des  $d^2$ -Gesetzes ist somit auch im Fall des Abbrands des Kohlenstoffpartikels anzunehmen, dass es sich um einen Transport-kontrollierten Prozess handelt. Die Diffusion des molekularen Sauerstoffs ( $\text{O}_2$ ) zur Partikeloberfläche stellt dabei den geschwindigkeitsbestimmenden Transportprozess dar. Dies bedeutet im Umkehrschluss, dass es sich nicht um einen Prozess handelt, der durch die chemische Kinetik der Oberflächenreaktionen zeitlich beschränkt ist (Kinetik-kontrolliert). Um dieses Phänomen genauer zu untersuchen, sind Simulationen durchgeführt worden, bei denen die Reaktionsraten der Oberflächenreaktionen künstlich verändert wurden, um die Grenzfälle des Transport-kontrollierten Prozesses und des Kinetik-kontrollierten Prozesses darzustellen. Für den Transport-kontrollierten Grenzfall wurden dazu die Reaktionsraten mit dem Faktor  $10^3$  multipliziert, für den Kinetik-kontrollierten Grenzfall wurde eine Multiplikation mit dem Faktor  $10^{-3}$  vorgenommen. Das Limit des perfekt Transport-kontrollierten Prozesses kann zudem unter der Annahme der Konstanz der Brennkonzante  $K$  analytisch berechnet werden.

$$\phi = \frac{\rho}{4} \cdot \frac{K}{d}, \quad K = \text{const.} \quad \longrightarrow \quad \frac{\phi(d)}{\phi(d = 250 \mu\text{m})} = \frac{250 \mu\text{m}}{d} \quad (7.3)$$

In Abbildung 7.5 sind die Brennraten für die beschriebenen Fälle in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser dargestellt. Um die analytische Berechnung des perfekt Transport-

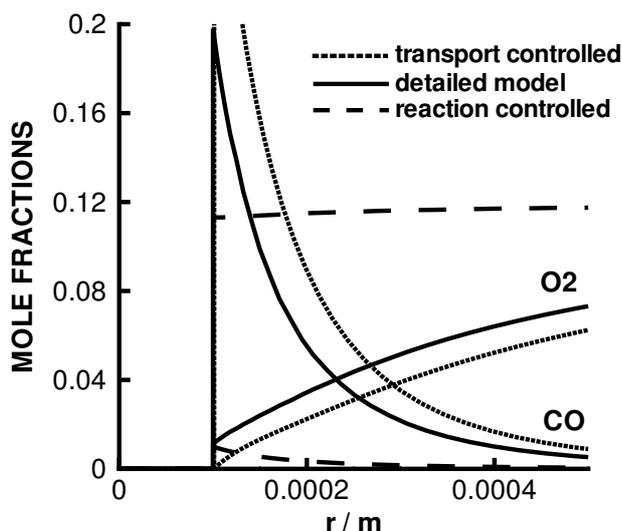
kontrollierten Limits zu vereinfachen, werden relative Brennraten bezogen auf die Brennrate bei dem Durchmesser  $250 \mu\text{m}$  ( $\phi(d = 250 \mu\text{m})$ ) betrachtet.



**Abbildung 7.5:** Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser für den Transport-kontrollierten und den Kinetik-kontrollierten Grenzfall ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ ,  $12 \% \text{ O}_2$ ,  $72 \% \text{ N}_2$ ,  $16 \% \text{ H}_2\text{O}$ )

Wie man in Abbildung 7.5 erkennen kann, stimmen die Kurven des Transport-kontrollierten Grenzfalls und des perfekt Transport-kontrollierten Limits, das durch eine ideale Hyperbel repräsentiert wird, überein. Die detaillierte Simulation liefert eine Kurve, die über einen weiten Bereich ( $d_{part} > 150 \mu\text{m}$ ) mit der Kurve des Transport-kontrollierten Grenzfalls übereinstimmt. Die Kurve des Kinetik-kontrollierten Grenzfalls weicht hingegen schon für  $d_{part} < 225 \mu\text{m}$  merklich von der Kurve der detaillierten Simulation ab. Zudem zeigt der Kinetik-kontrollierte Grenzfall eine gänzlich andere Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser. Diese bleibt mit abnehmendem Partikeldurchmesser anfangs nahezu konstant und nimmt anschließend leicht ab, wohingegen im Fall der detaillierten Simulation die Brennrate mit abnehmendem Partikeldurchmesser monoton zunimmt. Diese Resultate entsprechen den Erwartungen, da eine aus der Reduktion des Durchmessers folgende Verringerung der typischen Längenskalen an der Oberfläche lediglich eine Steigerung der Brennrate im Transport-kontrollierten Fall und nicht im Kinetik-kontrollierten Fall verursacht. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass es sich bei dem Abbrand eines Kohlenstoffpartikels, zumindest bei den untersuchten Bedingungen, um einen hauptsächlich Transport-kontrollierten Prozess handelt, der lediglich bei kleineren Partikeldurchmessern zunehmend durch die chemische Kinetik der Oberflächenreaktionen kontrolliert wird. Diese Feststellung wird durch die Untersuchung der räumlichen Profile zweier ausgesuchter Spezies ( $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}$ ), die in Abbildung 7.6 gezeigt sind, bekräftigt.

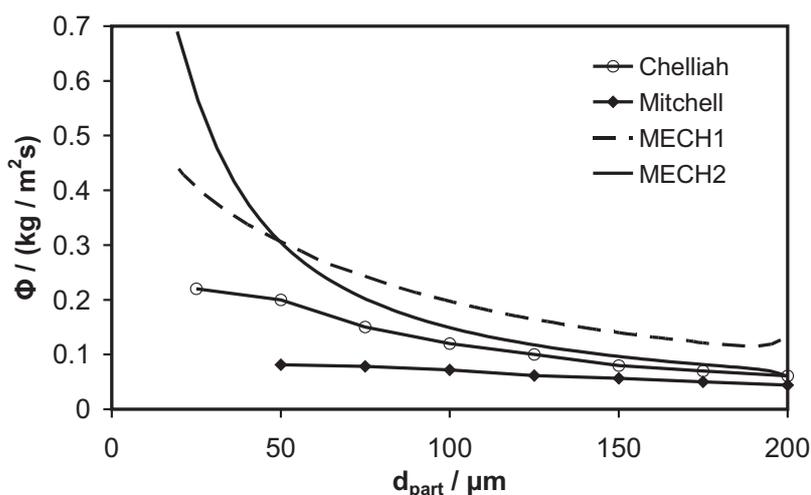
Auch hier stimmen die räumlichen Profile der detaillierten Simulation deutlich besser mit dem Transport-kontrollierten Grenzfall überein. Die aus den Resultaten gewonnenen Aus-



**Abbildung 7.6:** Vergleich der räumlichen Profile von O<sub>2</sub> und CO in der Grenzschicht des Partikels ( $r_{part} = 100 \mu\text{m}$ ,  $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ , 12 % O<sub>2</sub>, 72 % N<sub>2</sub>, 16 % H<sub>2</sub>O)

sagen entsprechen dabei auch den in der Literatur gezogenen Schlussfolgerungen [2].

Die präsentierten Resultate wurden alle unter Verwendung des Oberflächenreaktionsmechanismus MECH1 gewonnen. Die gezogenen Schlussfolgerungen gelten jedoch ebenso für Simulationen, die mit MECH2 durchgeführt wurden, sowie für andere untersuchte Umgebungsbedingungen, falls die Gastemperatur ausreichend hoch ist. In Abbildung 7.7 ist ein Vergleich der Abhängigkeit der Brennraten vom Partikeldurchmesser für die beiden verwendeten Reaktionsmechanismen MECH1 und MECH2 mit den Ergebnissen von Chelliah [18] dargestellt.



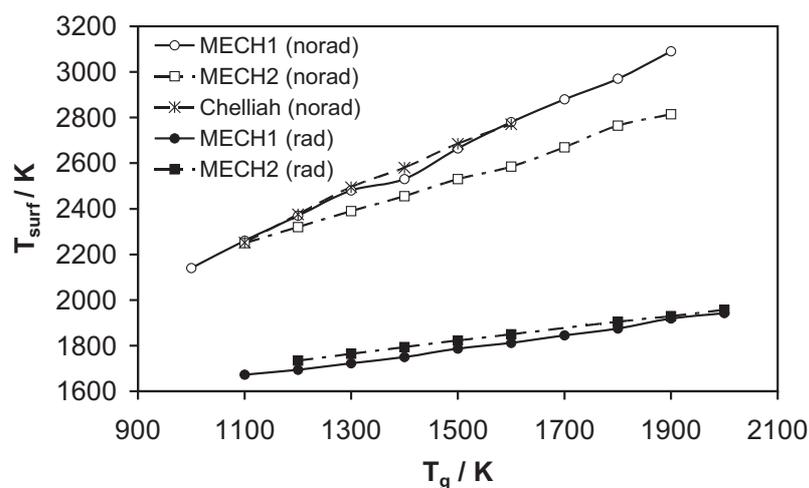
**Abbildung 7.7:** Vergleich der Abhängigkeit der Brennrate vom Partikeldurchmesser ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $T_g = 1650 \text{ K}$ , 12 % O<sub>2</sub>, 72 % N<sub>2</sub>, 16 % H<sub>2</sub>O)

Dabei stimmen die Brennraten von MECH2 und Chelliah für größere Durchmesser ( $d_{part} > 100 \mu\text{m}$ ) gut überein. Für kleinere Durchmesser weichen die Kurven jedoch stark voneinander ab. Auf der anderen Seite ist die Übereinstimmung des Verlaufs der Kurven von MECH1 und Chelliah gut, jedoch unterscheiden sich die absoluten Brennraten um circa den Faktor 2. Die jeweiligen Abweichungen in den Brennraten lassen sich auf die unterschiedlichen verwendeten Reaktionsmechanismen zurückführen, die entwickelt wurden, um das Verhalten von teilweise unterschiedlichen Stoffen, wie z. B. Graphit oder poröse Kohle, abzubilden. Nichtsdestotrotz lässt sich eine Übereinstimmung im qualitativen Verlauf der drei Kurven erkennen.

Aufgrund der nicht vorhandenen Konstanz der charakteristischen Größen des untersuchten Verbrennungsprozesses werden im folgenden Resultate für einen bestimmten Radius bzw. Durchmesser ausgewertet. Diese Resultate entstammen gleichwohl instationären Simulationen.

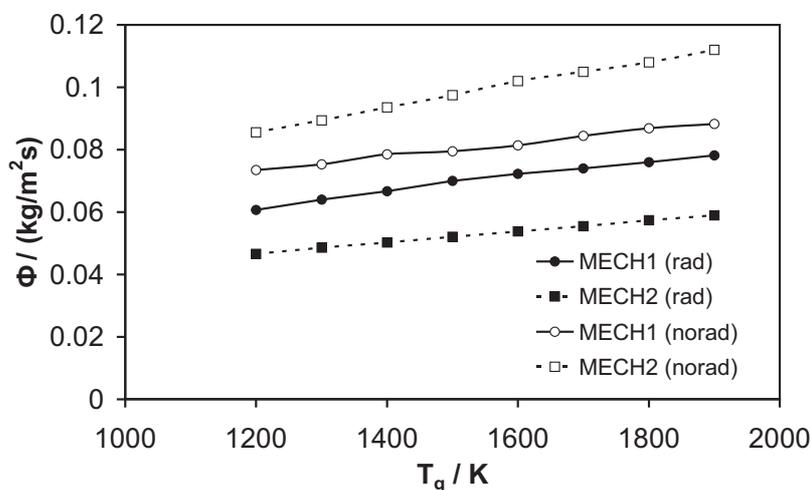
## 7.2 Einfluss der Wärmestrahlung

In der Vergangenheit wurden häufig Simulationen des Abbrands eines Kohlenstoff- oder Kohlepartikels durchgeführt, bei denen die abgegebene Wärmestrahlung an der Partikeloberfläche vernachlässigt wurde [18, 46]. Aus diesem Grund soll der Einfluss der Berücksichtigung der Wärmestrahlung an der Oberfläche auf die charakteristischen Größen des Brennverlaufs untersucht werden. In Abbildung 7.8 ist die Abhängigkeit der Oberflächentemperatur des Partikels von der Temperatur der umgebenden Gasphase unter Berücksichtigung des Strahlungsverlusts an der Oberfläche (rad) und ohne Berücksichtigung des Strahlungsverlusts (norad) dargestellt.



**Abbildung 7.8:** Abhängigkeit der Oberflächentemperatur des Partikels von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von Wärmestrahlung ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $d_{part}(0) = 400 \mu\text{m}$ ,  $1\% \text{ H}_2\text{O}$ )

Wie man erkennen kann, stimmen die Ergebnisse ohne Strahlungsverlust mit den Resultaten von Chelliah [18], bei denen ebenfalls keine Wärmestrahlung berücksichtigt worden ist, überein. Wie erwartet zeigen die Ergebnisse deutliche Unterschiede für die beiden Fälle. Die Oberflächentemperaturen unter Berücksichtigung der Wärmestrahlung liegen um 600 bis 1200 K unterhalb den Oberflächentemperaturen ohne Wärmestrahlung. Zudem zeigen die Oberflächentemperaturen mit Wärmestrahlung eine nicht so starke Abhängigkeit von der Temperatur der umgebenden Gasphase. MECH1 weist dabei eine höhere Sensitivität bezüglich der Berücksichtigung der Wärmestrahlung als MECH2 auf. Nichtsdestotrotz ergeben sich im Fall beider Mechanismen signifikante Unterschiede in der Oberflächentemperatur, die z. B. hinsichtlich der Initiierung einer Zündung einer zündfähigen Mischung von Gasen von entscheidender Bedeutung sein kann.



**Abbildung 7.9:** Abhängigkeit der Brennrate des Partikels von der Gastemperatur mit und ohne Berücksichtigung von Wärmestrahlung ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $d_{part}(0) = 400 \mu\text{m}$ ,  $1\% \text{ H}_2\text{O}$ )

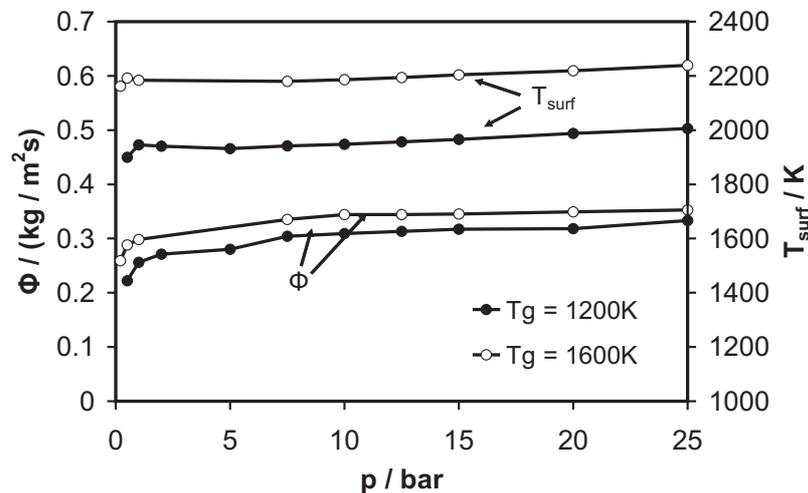
Die in Abbildung 7.9 dargestellte Abhängigkeit der Brennrate von der Temperatur des umgebenden Gases zeigt ebenfalls signifikante Unterschiede in der Brennrate unter Berücksichtigung der Wärmestrahlung gegenüber einer Vernachlässigung derselben. Der Energieverlust durch Wärmestrahlung an der Oberfläche und die daraus folgende geringere Oberflächentemperatur sorgen für eine Verringerung der Brennraten. Im Fall des Oberflächenreaktionsmechanismus MECH2 reduziert sich die Brennrate sogar um ungefähr den Faktor 2. Im Fall von MECH1 lässt sich lediglich eine Reduktion der Brennrate um ca. 20% feststellen. In beiden Fällen hat diese Reduktion der Brennrate jedoch erhebliche Auswirkungen auf den gesamten Brennverlauf des Partikels. So wird z. B. aufgrund der Reduktion der Brennraten die Lebensdauer des Partikels wesentlich verlängert.

Aufgrund des in diesem Abschnitt festgestellten zum Teil maßgeblichen Einflusses der Wärmestrahlung auf die charakteristischen Größen des Abbrands von Kohlenstoffpartikeln wur-

de bei allen durchgeführten Simulationen<sup>11</sup> die Wärmestrahlung an der Partikeloberfläche berücksichtigt.

### 7.3 Einfluss des Drucks

Die Abhängigkeit der Brennrate eines Kohlenstoffpartikels vom äußeren Druck, die hinsichtlich der Betriebsbedingungen von technischen Systemen wie der Druckkohlestaubfeuerung [108] von Bedeutung ist, soll im folgenden bestimmt werden. Dazu wird im folgenden der Einfluss des äußeren Drucks auf das Brennverhalten des Kohlenstoffpartikels untersucht. Abbildung 7.10 zeigt die Abhängigkeit der Brennrate und der Oberflächentemperatur vom Umgebungsdruck im Bereich von 0.5 bar bis 25 bar für zwei unterschiedliche Gastemperaturen.



**Abbildung 7.10:** Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate vom Umgebungsdruck ( $d_{part} = 100 \mu\text{m}$ , 2% H<sub>2</sub>O)

Für Drücke oberhalb 1 bar bleiben sowohl die Oberflächentemperatur als auch die Brennrate mit steigendem Druck nahezu konstant. Lediglich im Bereich von 1 bar bis 5 bar kann ein geringer Anstieg der Brennrate beobachtet werden. Die erhaltenen Resultate stehen im Einklang mit den experimentellen Ergebnissen von Croiset et al. [24], die durch Experimente mit Kohlepartikeln mit einem Durchmesser zwischen  $90 \mu\text{m}$  und  $106 \mu\text{m}$  in einem Festbettreaktor erzielt wurden. Auch Croiset et al. stellen nur eine geringfügige Abhängigkeit der Brennrate vom Umgebungsdruck fest. Das gezeigte Verhalten spricht ebenfalls für die Tatsache, dass ein Transport-kontrollierter Prozess vorliegt. Die in Abschnitt 7.1 präsentierten Ergebnisse lassen vermuten, dass es sich bei dem die Brennrate kontrollierenden

<sup>11</sup>Einzig bei den in diesem Abschnitt mit (norad) gekennzeichneten Simulationen wurde zur Untersuchung des Einflusses die Wärmestrahlung nicht berücksichtigt.

Transportprozess um die Diffusion des molekularen Sauerstoffs ( $O_2$ ) an die Oberfläche handelt. Aus diesem Grund soll die Druckabhängigkeit des Diffusionsstroms einer bestimmten Spezies (z. B. Sauerstoff) in der Gasphase betrachtet werden. Nach der verwendeten Curtiss Hirschfelder Näherung gilt für den Diffusionsstrom einer bestimmten Spezies  $j_{m,i}$  in einer Mischung in der Gasphase [12, 51, 138]

$$\begin{aligned} j_{m,i} &= -D_i^m \rho \frac{w_i}{x_i} \frac{\partial x_i}{\partial r}, & D_i^m(p) &\sim \frac{1}{p} \\ \Rightarrow j_{m,i} &\neq f(p) \quad , & & \end{aligned} \quad (7.4)$$

wobei  $\rho$  die Dichte,  $w_i$  den Massenbruch,  $x_i$  den Molenbruch und  $D_i^m$  den Diffusionskoeffizienten der Spezies  $i$  in der Mischung, und  $r$  die Ortskoordinate darstellt.

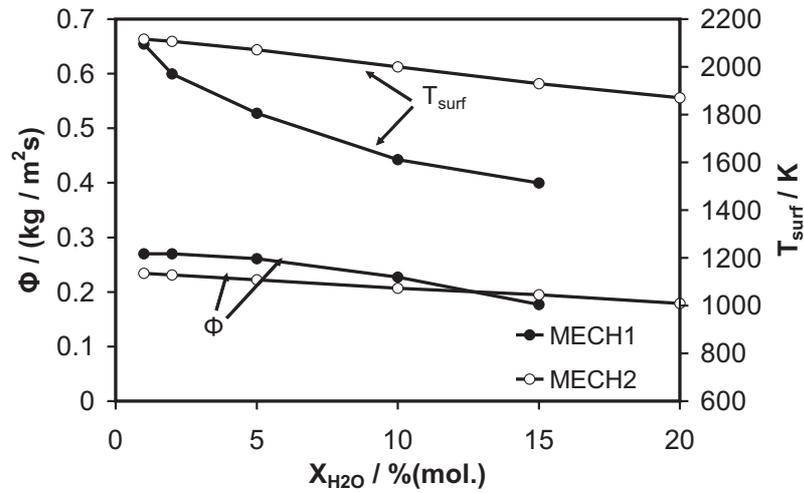
Aufgrund der Unabhängigkeit des Diffusionsstroms vom äußeren Druck bestärkt die gefundene Konstanz der Brennrate des Partikels bei einer Variation des Umgebungsdrucks die Feststellung, dass es sich beim Abbrand des Kohlenstoffpartikels um einen Transportkontrollierten Prozess handelt.

## 7.4 Einfluss der Wasserkonzentration

Bei der Verbrennung eines Kohlenstoffpartikels ist die Anwesenheit von gasförmigem Wasser bzw. Wasserstoff von entscheidender Bedeutung (insbesondere hinsichtlich der Oxidation von Kohlenmonoxid) [69, 115, 138]. Daher wird der Einfluss der Wasserkonzentration in der Gasphase auf die charakteristischen Größen des Verbrennungsprozesses untersucht<sup>12</sup>. In Abbildung 7.11 ist die Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate vom Molenbruch des Wassers in der Gasphase im Bereich von 1 % bis 20 % dargestellt.

Im Fall beider Mechanismen sinkt die Brennrate geringfügig mit ansteigender Wasserkonzentration. Im Fall von MECH1 beträgt die relative Änderung der Brennrate jedoch insgesamt 20 %, so dass hier von einer signifikanten Änderung gesprochen werden kann. Auch hinsichtlich der Oberflächentemperatur zeigt MECH1 eine größere Sensitivität. Die Oberflächentemperatur sinkt hier um bis zu 500 K mit ansteigender Wasserkonzentration, wohingegen im Fall von MECH2 eine Absenkung von lediglich 200 K beobachtet werden kann. MECH1 weist somit zwar eine merkliche Änderung der charakteristischen Größen auf, jedoch gilt es zu erwähnen, dass die Variation der Wasserkonzentration in der Gasphase von 1 % auf 15 % eine beträchtliche Änderung darstellt.

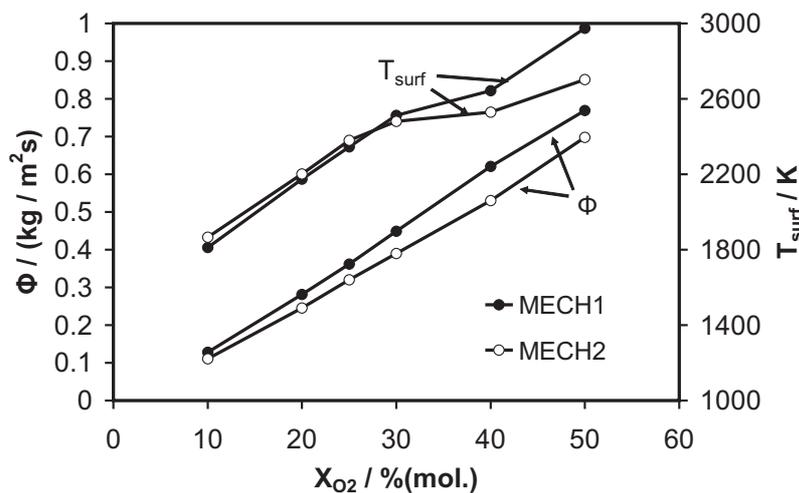
<sup>12</sup>Bei der Untersuchung des Einflusses der Wasserkonzentration in Abschnitt 7.4 sowie der Sauerstoffkonzentration in Abschnitt 7.5 entspricht die Variation der entsprechenden Konzentration einer Veränderung der Spezieszusammensetzung in der umgebenden Gasphase. Dies bedeutet hinsichtlich der Modellierung eine Veränderung der Anfangsbedingungen sowie der Randbedingungen am äußeren Rand (siehe Abschnitt 3.1).



**Abbildung 7.11:** Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate von der Wasserkonzentration in der Gasphase ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $d_{\text{part}} = 100 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1200 \text{ K}$ )

## 7.5 Einfluss der Sauerstoffkonzentration

Falls der untersuchte Verbrennungsprozess durch die Diffusion des Sauerstoffs an die Oberfläche zeitlich limitiert wird, sollten die charakteristischen Größen eine erhebliche Abhängigkeit von der Sauerstoffkonzentration in der Gasphase zeigen. Abbildung 7.12 zeigt die Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate von der Sauerstoffkonzentration der Gasphase.



**Abbildung 7.12:** Abhängigkeit der Oberflächentemperatur und der Brennrate von der Konzentration des Sauerstoffs in der Gasphase ( $p = 1.01 \text{ bar}$ ,  $d_{\text{part}} = 100 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1600 \text{ K}$ ,  $1 \% \text{ H}_2\text{O}$ )

Wie erwartet steigt die Brennrate für beide Mechanismen nahezu linear mit ansteigender Sauerstoffkonzentration. Die Oberflächentemperatur steigt für geringe Konzentrationen

nen ( $\leq 30\%$ ) ebenfalls nahezu linear mit dem Sauerstoffgehalt an. Für Konzentrationen über  $30\%$  weist die Kurve einen deutlichen Knick auf, und die Ergebnisse von MECH1 und MECH2 unterscheiden sich deutlich. Erneut bestärkt die nahezu lineare Abhängigkeit der Brennrate von der Sauerstoffkonzentration der Gasphase die These des Transportkontrollierten Verbrennungsprozesses.

Aufgrund der erhaltenen Resultate kann festgestellt werden, dass der Abbrand eines Kohlenstoffpartikels bei den untersuchten Bedingungen (Gastemperatur  $\geq 1100\text{ K}$ , Umgebungsdruck  $\geq 1\text{ bar}$ ) vor allem durch die Diffusion des Sauerstoffs an die Partikeloberfläche zeitlich limitiert wird. Zu diesem Schluss gelangen auch Nettleton und Stirling durch Stoßrohrexperimente [85]. Des weiteren weist die Wärmestrahlung der Partikeloberfläche einen bedeutenden Einfluss auf den Verbrennungsprozess auf, der in numerischen Simulationen nicht vernachlässigt werden darf. Die erhaltenen Ergebnisse legen weiterhin den Schluss nahe, dass sowohl die Brennrate  $\phi$  als auch die Oberflächentemperatur eines brennenden Kohlenstoffpartikels lediglich vom momentanen Partikelradius abhängen und somit unabhängig von der Vorgeschichte des Partikels sind. Vergleicht man die Ergebnisse der beiden verwendeten Reaktionsmechanismen MECH1 und MECH2 weisen beide Mechanismen in allen untersuchten Fällen dasselbe qualitative Verhalten auf. Dieses Verhalten kann auf den Umstand zurückgeführt werden, dass es sich bei dem Abbrand des Kohlenstoffpartikels um einen hauptsächlich Transportkontrollierten Prozess handelt. Nichtsdestotrotz lassen sich signifikante quantitative Unterschiede in den Resultaten der beiden Mechanismen feststellen, wobei der Reaktionsmechanismus von Bradley et al. (MECH1) eine höhere Sensitivität hinsichtlich der Umgebungsbedingungen aufweist. Aus diesem Grund und angesichts des höheren Detaillierungsgrads können die mit MECH1 erzielten Resultate als zuverlässiger angesehen werden.



# Kapitel 8

## Zusammenfassung und Ausblick

Der Zünd- und Verbrennungsprozess von Einzeltropfen ist unter Berücksichtigung eines detaillierten Verdunstungsmodells, detaillierter Transportmodelle sowie detaillierter Reaktionsmechanismen untersucht worden. Die in dieser Arbeit (weiter-)entwickelten Simulationstools INSFLA und FLAME2D wurden validiert.

Zur Erweiterung des grundlegenden Verständnisses des Zündprozesses von Brennstofftropfen wurden die Einflüsse verschiedener Umgebungsparameter untersucht und die den Zündprozess bestimmenden Teilprozesse identifiziert. Analog zur Selbstzündung homogener Brennstoff/Luft-Gemische weist die Temperatur der umgebenden Gasphase den stärksten Einfluss auf die Zündverzugszeit des selbstzündenden Einzeltropfens auf. Es lässt sich eine exponentielle Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Temperatur der Gasphase feststellen. Jedoch fällt diese Abhängigkeit im Vergleich zu homogenen Brennstoff/Luft-Gemischen im Fall hoher Umgebungstemperaturen ( $T_g > 1000$  K) nicht so stark aus, da die Temperaturabhängigkeit der Transportprozesse, die sich in diesem Temperaturbereich als geschwindigkeitsbestimmend erweisen, im Vergleich zur chemischen Kinetik nicht so ausgeprägt ist. Im Bereich niedriger Umgebungstemperaturen ( $T_g < 1000$  K) kann im Gegensatz zu homogenen Gemischen kein NTC-Verhalten festgestellt werden. Dies liegt zum einen an der Inhomogenität der Temperaturverteilung in der Umgebung des Tropfens und zum anderen an der auch im NTC-Bereich weiterhin bestehenden Temperaturabhängigkeit der Transportprozesse. Es ist in diesem Temperaturbereich lediglich eine Abschwächung der Temperaturabhängigkeit der Zündverzugszeit festzustellen. Dieses Verhalten verdeutlicht die starke Interaktion zwischen den physikalischen Transportprozessen und der chemischen Kinetik sowie den daraus folgenden stärkeren Einfluss der chemischen Kinetik auf den Zündverzug. Dieser Einfluss äußert sich ebenfalls in der Insensitivität der Zündverzugszeit hinsichtlich des Tropfenradius in diesem Temperaturbereich. Im Bereich hoher Gastemperaturen ist hingegen eine deutliche Abhängigkeit der Zündverzugszeit vom Tropfenradius festzustellen. Der Einfluss der Tropfentemperatur auf den Zündverzug kann unter der Voraussetzung, dass sich die anfängliche Tropfentemperatur nicht deutlich von der Kühlgrenztemperatur

des Tropfens unterscheidet, als geringfügig angesehen werden. Liegt die anfängliche Tropfentemperatur hingegen weit unterhalb der Kühlgrenztemperatur des Tropfens, verzögert sich die Selbstzündung des Tropfens merklich, wobei die Verzögerung eine annähernd lineare Abhängigkeit von der Tropfentemperatur aufweist.

Wie schon bei der Untersuchung der Radiusabhängigkeit der Zündverzugszeit offenbart sowohl die Analyse des Einflusses des Drucks als auch die Analyse des Einflusses einer Vorverdampfung auf den Zündprozess zwei Temperaturbereiche, die sich durch unterschiedliche geschwindigkeitsbestimmende Teilprozesse der Selbstzündung auszeichnen. Während für hohe Gastemperaturen die physikalischen Transportprozesse, wie Verdunstung, Diffusion und Wärmeleitung geschwindigkeitsbestimmend für den Zündprozess des Tropfens sind, stellt für niedere Temperaturen die chemische Kinetik den zeitlimitierenden Faktor dar.

Die Dominanz der verschiedenen Teilprozesse tritt auch bei der Untersuchung der unterschiedlichen Zündmodi von n-Heptantropfen zutage. Das Auftreten der unterschiedlichen Zündmodi, i. e. einstufige und zweistufige Zündung sowie kalte Flammen, in Abhängigkeit von Umgebungstemperatur und Umgebungsdruck konnte in Übereinstimmung mit experimentellen Untersuchungen festgestellt werden. Dabei ließ sich ein Zusammenhang zwischen dem Zündmodus und dem lokalen Zustand am Zündort erkennen. Während die einstufige Zündung, die kalte Flamme sowie die erste Stufe der zweistufigen Zündung in lokal mageren Bereichen initiiert werden, wie es auch für andere Brennstoffe der Fall ist, hat die zweite Stufe der zweistufigen Zündung in lokal fetten Gebieten ihren Ursprung, was die Dominanz der chemischen Kinetik hinsichtlich dieses Zündprozesses aufzeigt.

Um eine Verbesserung des Verständnisses hinsichtlich der Erforschung des Selbstzündprozesses von realen Kraftstoffsprays zu erreichen, muss bei der Simulation der Zündung von Einzeltropfen, wie bereits von anderen Autoren angeregt wurde [26, 106], zu der Modellierung von Multikomponenten-Tropfen sowie der Untersuchung des Einflusses einer Relativbewegung von Tropfen und Gasphase übergegangen werden. Aus diesem Grund wurde der Zünd- und Verbrennungsprozess von Multikomponenten-Tropfen bestehend aus Alkohol/Wasser-Mischungen sowie aus n-Heptan/iso-Oktan-Mischungen analysiert. Die charakteristischen Größen des Zünd- und Verbrennungsprozesses, wie Zündverzugszeit, Oberflächentemperatur und Brennkonzstante  $K$ , zeigen dabei eine signifikante Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis der Alkohol/Wasser-Tropfen. Im Fall der n-Heptan/iso-Oktantropfen lässt sich dieser Einfluss des Mischungsverhältnisses ebenfalls in den entsprechenden Temperaturbereichen feststellen. Die zeitliche Evolution sowie der Verdunstungsprozess werden durch die Transportprozesse am Phasenübergang und in der flüssigen Phase merklich beeinflusst. Ein relevanter Einfluss auf die Zündverzugszeit lässt sich hingegen nur bei den Dampfdrücken der Komponenten des Tropfens feststellen. Somit ist für die Abbildung des Zünd- und Verbrennungsverhaltens von realen Kraftstoffen auf Referenzkraftstoffe bestehend aus einer begrenzten Zahl von Komponenten nicht nur eine korrekte Modellierung der chemischen Kinetik, sondern auch des Verdunstungsverhaltens

des Multikomponenten-Brennstoffs vonnöten. Für eine weitere Verbesserung der Modellierung des Zünd- und Verbrennungsverhaltens von Tropfen bestehend aus Realkraftstoffen ist eine Abbildung des Realkraftstoffs auf einen Referenzkraftstoff anhand seiner Oktanzahl, die hauptsächlich die chemischen Eigenschaften des Kraftstoffs charakterisiert, nicht ausreichend. Es gilt somit, die Komponenten des Multikomponenten-Referenzkraftstoffs derart auszuwählen, dass zum einen sowohl die chemischen als auch die physikalischen Eigenschaften des Realkraftstoffs zuverlässig abgebildet werden und dass zum anderen der daraus resultierende Rechenaufwand die Durchführung von Simulationen erlaubt. Die Simulation der Zündung und Verbrennung von n-Heptan/iso-Oktantropfen stellt den ersten Schritt zur Modellierung der Zündung und Verbrennung von realen Kraftstofftropfen dar und liefert zudem einen Ansatz zur weiteren Verbesserung der Modellierung.

Eine realistische Beschreibung der Selbstzündung von Kraftstoffsprays muss zudem den Einfluss der Strömung berücksichtigen [106]. Detaillierte Untersuchungen ergeben eine merkliche Verkürzung des Zündverzugs mit steigender Relativgeschwindigkeit von Tropfen und umgebender Gasphase. Als Ursache dafür wurde die Verstärkung von lokalen Temperatur- und Konzentrationsgradienten und die damit verbundene Beschleunigung der Transportprozesse identifiziert. Die Abhängigkeit der Zündverzugszeit von einer Beschleunigung des Tropfens bzw. der Gasströmung fällt dagegen vergleichsweise sehr gering aus. Die der Zündung nachfolgende Bildung einer den Tropfen einhüllenden Flamme lässt sich auch für den Fall der äußeren Gasströmung beobachten. Tritt die Zündung stromabwärts des Tropfens auf, kann die Bildung einer solchen einhüllenden Flamme mit einer Flammenfortpflanzung stromaufwärts entgegen der äußeren Strömung verbunden sein.

Der Charakter dieser einhüllenden Flamme wurde ebenfalls untersucht. Da es sich um eine laminare nicht-vorgemischte Flamme handelt, existiert eine eindeutige Abhängigkeit der Temperatur vom Mischungsbruch. Diese Abhängigkeit kann bei Kenntnis der Gastemperatur, des Umgebungsdrucks und der Relativgeschwindigkeit des Tropfens durch die Modellierung der Verbrennung eines Einzeltropfens festgestellt werden. Sind die Voraussetzungen für eine Beschreibung der Sprayverbrennung als ein Ensemble von brennenden Einzeltropfen erfüllt, lassen sich (turbulente) Sprayflammen mit Hilfe dieser laminaren Einzelflämmchen beschreiben. Die entwickelten Simulationstools können hierbei zur Erstellung von Bibliotheken dieser Einzelflämmchen (Flamelet-Bibliotheken) verwendet werden.

Über die Tropfenverbrennung hinaus wurden die entwickelten Simulationstools dazu verwendet, den Abbrand eines Kohlenstoffpartikels detailliert zu simulieren. Dabei handelt es sich um einen Transport-kontrollierten Verbrennungsprozess. Die charakteristischen Größen des Verbrennungsprozesses, wie Oberflächentemperatur und Brennrate des Partikels, weisen somit eine signifikante Abhängigkeit von der Zusammensetzung der umgebenden Gasphase auf. Der Einfluss des Drucks auf den Verbrennungsprozess ist hingegen zu vernachlässigen. Die erhaltenen Ergebnisse legen weiterhin den Schluss nahe, dass sowohl die Brennrate als auch die Oberflächentemperatur eines brennenden Kohlenstoffpartikels lediglich vom

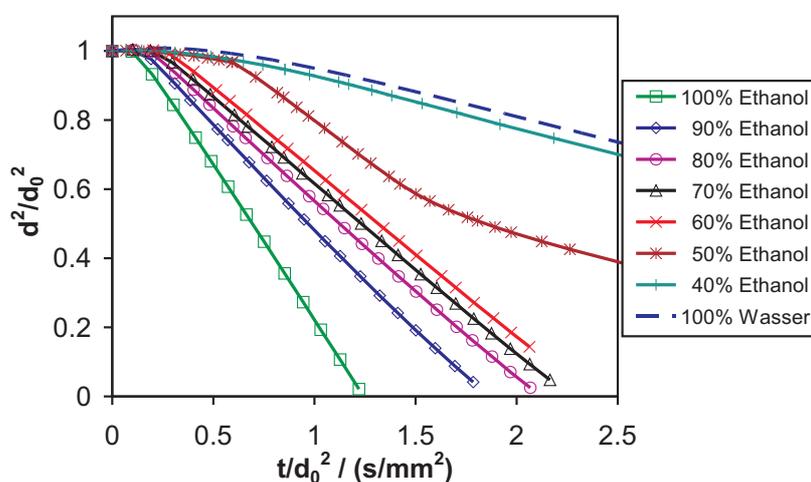
momentanen Partikelradius abhängen und somit unabhängig von der Vorgeschichte des Partikels sind.

Darüber hinaus liefern die Resultate dieser Arbeit Anregungen zur weiteren Optimierung der Modellierung von Zünd- und Verbrennungsprozessen von Tropfen sowie Partikeln. So zeigen die Resultate in Abschnitt 4.1, dass eine weiterführende Optimierung von Reaktionsmechanismen, die zur Simulation der Zündung und Verbrennung eines homogenen Brennstoff/Luft-Gemisches entwickelt wurden, hinsichtlich der Modellierung der Zündung von Brennstofftropfen durchaus ratsam ist (siehe auch [106]). Ein weiterer Schritt sollte (vor allem bei hohen Umgebungsdrücken) in der Berücksichtigung bzw. Untersuchung der Einflüsse von Realgaseffekten sowie thermischer Strahlung bestehen. Des weiteren empfiehlt sich die Erweiterung der Modellierung von Multikomponenten-Tropfen auf nicht ideale Mischungen von Flüssigkeiten [72]. Für eine zuverlässige Beschreibung realer Szenarien ist zudem zukünftig die komplexe zeitliche Variation der Gasströmung unter Berücksichtigung der Turbulenz sowie die Wechselwirkung mehrerer Tropfen einzubeziehen. Dabei sind die Strömung im Innern des Tropfens sowie die in Abschnitt 3.3 beschriebenen Oberflächenspannungseffekte in der Modellierung zu berücksichtigen (siehe auch [31,60,95,96,113]). Die Kombination von detaillierter Modellierung der physikalischen und chemischen Prozessen in der Umgebung von einzelnen Tropfen mit der zuverlässigen Modellierung des äußeren (turbulenten) Strömungsfelds sowie der Wechselwirkung verschiedener Tropfen kann dabei auch in der Verwendung von Flamelet-Bibliotheken zur Berechnung turbulenter Sprayflammen sowie in der Kopplung von turbulenter Strömungssimulation mit detaillierter Simulation in der Tropfenumgebung [119] bestehen.

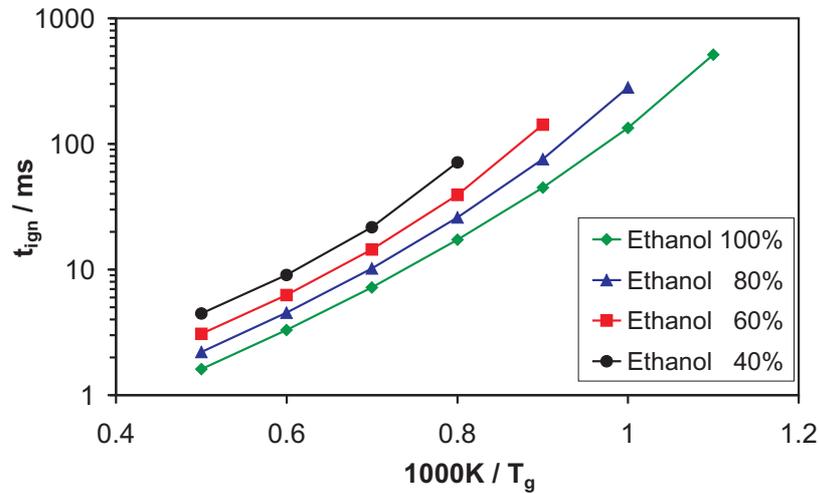
# Anhang A

## Zündung und Verbrennung von Ethanol/Wassertropfen

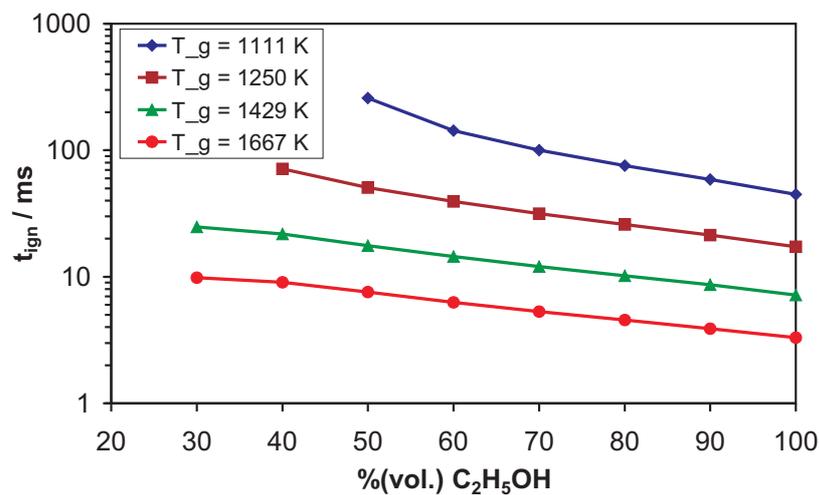
In den Abbildungen A.1 bis A.5 sind die Resultate der Untersuchung des Zündungs- und Verbrennungsverhaltens eines Ethanol/Wassertropfens dargestellt. Aufgrund der Analogie der hier gezeigten Ergebnisse zu den Resultaten der Simulation der Zündung und Verbrennung von Methanol/Wassertropfen sind im folgenden lediglich die entsprechenden Abbildungen aufgeführt. Die Diskussion der Resultate wird in Abschnitt 5.1 anhand von Methanol/Wassertropfen vorgenommen.



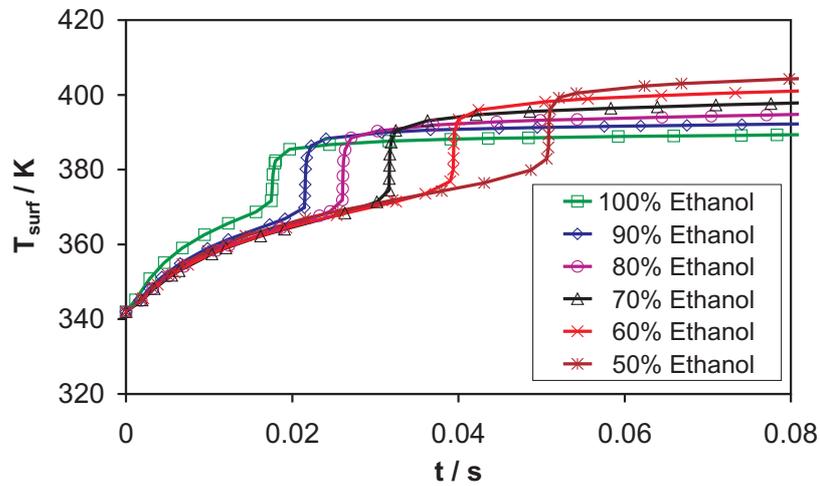
**Abbildung A.1:** Zeitliche Evolution des Durchmessers eines Ethanol/Wassertropfens bei verschiedenen Mischungsverhältnissen von Ethanol und Wasser ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_g = 1250$  K,  $T_D(0) = 342$  K)



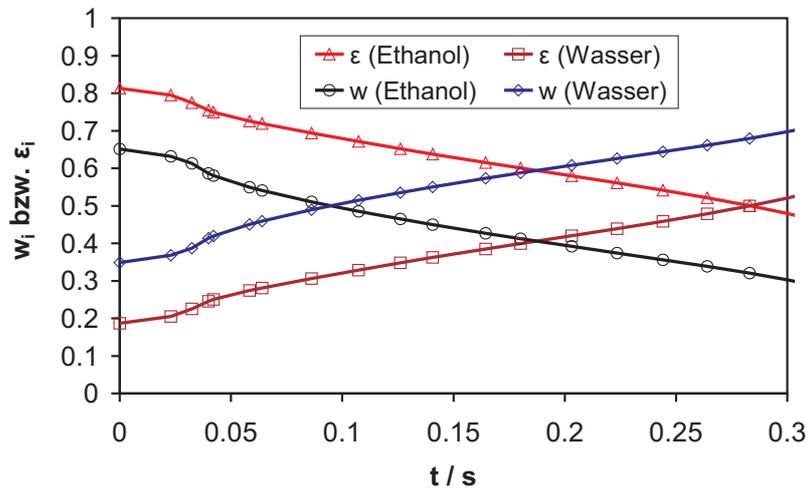
**Abbildung A.2:** Arrheniusdiagramm der Zündverzugszeiten von Ethanol/Wassertropfen ( $p = 7$  bar,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342$  K)



**Abbildung A.3:** Abhängigkeit der Zündverzugszeit eines Ethanol/Wassertropfen vom Mischungsverhältnis ( $p = 7$  bar,  $r_D = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342$  K)



**Abbildung A.4:** Zeitliche Evolution der Oberflächentemperatur eines Ethanol/Wassertropfens ( $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ )



**Abbildung A.5:** Zeitliche Evolution der Massenbrüche  $w$  sowie der Anteile  $\epsilon$  der einzelnen Spezies am verdunstenden Gesamtmassenstrom eines Ethanol/Wassertropfens (70% vol. Ethanol,  $p = 7 \text{ bar}$ ,  $r_D(0) = 200 \mu\text{m}$ ,  $T_D(0) = 342 \text{ K}$ ,  $T_g = 1250 \text{ K}$ )



# Literaturverzeichnis

- [1] ABRAMZON, B. ; SIRIGNANO, W.A.: Droplet vaporization model for spray combustion calculations. *International Journal of Heat Mass Transfer* 32 (1989), S. 1605–1618
- [2] ADOMEIT, G. ; HOCKS, W. ; HENDRIKSEN, K.: Combustion of a Carbon Surface in a Stagnation Point Flow Field. *Combustion and Flame* 59 (1985), S. 273–288
- [3] AGGARWAL, S.: Effects of Internal Heat Transfer Models on the Ignition of a Fuel Droplet. *Combustion Science and Technology* 42 (1985), S. 325–334
- [4] AGGARWAL, S.K.: A Review of Spray Ignition Phenomena: Present Status and Future Research. *Progress in Energy and Combustion Science* 24 (1998), S. 565–600
- [5] AHMED, S.S. ; MORÉAC, G. ; ZEUCH, T. ; MAUSS, F.: Reduced Mechanism for the Oxidation of the Mixtures of n-Heptane and iso-Octane. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting*. Louvain-la-Neuve, 2005
- [6] AOUINA, Y.: *Modellierung der Tropfenverbrennung unter Einbeziehung detaillierter Reaktionsmechanismen*, Universität Stuttgart, Dissertation, 1997
- [7] AOUINA, Y. ; MAAS, U. ; GUTHEIL, E. ; RIEDEL, U. ; WARNATZ, J.: Mathematical Modeling of Droplet Heating, Vaporization and Ignition Including Detailed Chemistry. *Combustion Science and Technology* 173 (2001), S. 1–23
- [8] ARBEITSGEMEINSCHAFT ENERGIEBILANZEN E.V.: *Mitteilungen zum Primärenergieverbrauch*. 2006
- [9] BAE, J.H. ; AVEDISIAN, C.T.: Experimental Study of the Effect of Helium/Nitrogen Concentration and Initial Droplet Diameter on Nonane Droplet Combustion with Minimal Convection. *Proceedings of the Combustion Institute* 31 (2006)
- [10] BAUER, H.-J.: New Low Emission Strategies and Combustor Designs for Civil Aero-engine Applications. *Progress in Computational Fluid Dynamics* 4 (2004), S. 130–142
- [11] BERGERON, C.A. ; HALLETT, W.L.H.: Ignition Characteristics of Liquid Hydrocarbon Fuels as Single Droplets. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 67 (1989), S. 142–149

- [12] BIRD, R.B. ; STEWARD, W.E. ; LIGHTFOOT, E.N.: *Transport Phenomena*. New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore : John Wiley & Sons, 1960
- [13] BOHL, W.: *Technische Strömungslehre*. 9. Aufl. Würzburg : Vogel, 1991
- [14] BP: *BP Statistical Review of World Energy*. 2006
- [15] BRADLEY, D. ; DIXON-LEWIS, G. ; EL-DIN HABIK, S. ; MUSHI, E.M.J.: The Oxidation of Graphite Powder in Flame Reaction Zones. *Proceedings of the Combustion Institute* 20 (1984), S. 931–940
- [16] CANO-WOLFF, M. ; KOCH, R. ; WITTIG, S.: Parametric Study of Autoignition / Institute for Thermal Turbomachinery, BRITE/EURAM Low Emissions Combustor Technology Program - Aeronautics Contract BRPR-CT95-0122. 2000. – Forschungsbericht
- [17] CHAUVEAU, C. ; GÖKALP, I. ; SEGAWA, D. ; KADOTA, T. ; ENOMOTO, H.: Effects of Reduced Gravity on Methanol Droplet Combustion at High Pressures. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1071–1077
- [18] CHELLIAH, H.K.: The Influence of Heterogeneous Kinetics and Thermal Radiation on the Oxidation of Graphite Particles. *Combustion and Flame* 104 (1996), S. 81–94
- [19] CHEVALIER, C.: *Entwicklung eines detaillierten Reaktionsmechanismus zur Modellierung der Verbrennungsprozesse von Kohlenwasserstoffen bei Hoch- und Niedertemperaturbedingungen*, Institut für Technische Verbrennung, Universität Stuttgart, Dissertation, 1993
- [20] CHIU, H.H. ; KIM, H.Y. ; CROKE, E.J.: Internal group combustion of liquid droplets. *Proceedings of the Combustion Institute* 19 (1982), S. 971–980
- [21] CHO, S.Y. ; CHOI, M.Y. ; DRYER, F.L.: Extinction of a Free Methanol Droplet in Microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute* 23 (1990), S. 1611–1617
- [22] CHO, S.Y. ; DRYER, F.L.: A numerical study of the unsteady burning behaviour of n-heptane droplets. *Combustion Theory and Modelling* 3 (1999), S. 267–280
- [23] CHO, S.Y. ; YETTER, R.A. ; DRYER, F.L.: A Computer Model for One Dimensional Mass and Energy Transport in and around Chemically Reacting Particles, Including Complex Gas-Phase Chemistry, Multi-Component Molecular Diffusion, Surface Evaporation, and Heterogeneous Reaction. *Journal of Computational Physics* 102 (1992), S. 160–179

- [24] CROISET, E. ; MALLET, C. ; ROUAN, J.-P. ; RICHARD, J.-R.: The Influence of Pressure on Char Combustion Kinetics. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 3095–3102
- [25] CUOCI, A. ; MEHL, M. ; BUZZI-FERRARIS, G. ; FARAVELLI, T. ; MANCA, D. ; RANZI, E.: Autoignition and burning rates of fuel droplets under microgravity. *Combustion and Flame* 143 (2005), S. 211–226
- [26] CUOCI, A. ; MEHL, M. ; PARATICO, T. ; FARAVELLI, T. ; RANZI, E.: Modeling of the evaporation and combustion of jet fuel droplets under microgravity conditions. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting*. Louvain-la-Neuve, 2005
- [27] DASH, S.K. ; SOM, S.K.: Ignition and Combustion of Liquid Fuel Droplet in a Convective Medium. *Journal of Energy Resources Technology* 113 (1991), S. 165–170
- [28] DEUFLHARD, P. ; HAIRER, E. ; ZUGCK, J.: One-step and Extrapolation Methods for Differential-Algebraic Systems. *Numerische Mathematik* 51 (1987), S. 501–516
- [29] DIETRICH, D.L. ; HAGGARD JR., J.B. ; DRYER, F.L. ; NAYAGAM, V. ; SHAW, B.D. ; WILLIAMS, F.A.: Droplet Combustion Experiments in Spacelab. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1201–1207
- [30] DWYER, H.A.: Calculations of Droplet Dynamics in High Temperature Environments. *Progress in Energy and Combustion Science* 15 (1989), S. 131–158
- [31] DWYER, H.A. ; AHARON, I. ; SHAW, B.D. ; NIAZMAND, H.: Surface Tension Influences on Methanol Droplet Vaporization in the Presence of Water. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1613–1619
- [32] DWYER, H.A. ; SHAW, B.D.: Marangoni and Stability Studies on Fiber-Supported Methanol Droplets Evaporating in Reduced Gravity. *Combustion Science and Technology* 162 (2001), S. 331–346
- [33] ELSNER, N. ; DITTMANN, A.: *Grundlagen der technischen Thermodynamik*. 7. Aufl. Berlin : Akademie, 1988
- [34] EMIG, R.: *Modellierung der Zündung von Multikomponenten-Kraftstofftropfen*, Institut für Technische Thermodynamik, Universität Karlsruhe, Studienarbeit, 2005
- [35] FAETH, G.M.: Current Status of Droplet and Liquid Combustion. *Progress in Energy and Combustion Science* 3 (1977), S. 191–224
- [36] FAETH, G.M.: Evaporation and Combustion of Sprays. *Progress in Energy and Combustion Science* 9 (1983), S. 1–76

- [37] FAETH, G.M.: Mixing, Transport and Combustion in Sprays. *Progress in Energy and Combustion Science* 13 (1987), S. 293–345
- [38] FAETH, G.M. ; OLSON, D.R.: The Ignition of Hydrocarbon Fuel Droplets in Air. *SAE Transactions* (1968), S. 1793–1802
- [39] FRITSCH, F.N. ; BUTLAND, J.: A method for constructing local monotone piecewise cubic interpolants. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing* 5 (1984), S. 300
- [40] GABELE, P.: Exhaust Emissions from In-Use Alternative Fuel Vehicles. *Journal of the Air & Waste Management Association* 45 (1995), S. 770–777
- [41] GERTHSEN, C. ; KNESER, H.O. ; VOGEL, H.: *Physik*. 16. Aufl. Berlin : Springer, 1989
- [42] GILBERT, R.G. ; LUTHER, K. ; TROE, J.: Theory of Thermal Unimolecular Reactions in the Fall-off Range. II. Weak Collision Rate Constants. *Berichte der Bunsen-Gesellschaft Physikalische Chemie* 87 (1983), S. 169–177
- [43] GOLOVITCHEV, V.: <http://www.tfd.chalmers.se/~valeri/MECH.html> (2004)
- [44] GRIFFITHS, J.F.: Cool flames - a hot prospect? In: *Proceedings of the European Combustion Meeting*. Louvain-la-Neuve, Belgium, 2005
- [45] GRIFFITHS, J.F. ; BARNARD, J.A.: *Flame and Combustion*. London : Blackie Academic & Professional, 1995
- [46] GURURAJAN, V.S. ; WALL, T.F. ; GUPTA, R.P. ; TRUELOVE, J.S.: Mechanisms for the Ignition of Pulverized Coal Particles. *Combustion and Flame* 81 (1990), S. 119–132
- [47] GUTHEIL, E. ; SIRIGNANO, W.A.: Counterflow Spray Combustion Modeling with Detailed Transport and Detailed Chemistry. *Combustion and Flame* 113 (1998), S. 92–105
- [48] HARA, H. ; KUMAGAI, S.: Experimental Investigation of Free Droplet Combustion under Microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute* 23 (1990), S. 1605–1610
- [49] HARA, H. ; KUMAGAI, S.: The Effect of Initial Diameter on Free Droplet Combustion with Spherical Flame. *Proceedings of the Combustion Institute* 25 (1994), S. 423–430
- [50] HEYWOOD, J.B.: *Internal Combustion Engine Fundamentals*. New York : McGraw-Hill, 1988

- [51] HIRSCHFELDER, J.O. ; CURTISS, C.F. ; BIRD, R.B.: *Molecular Theory of Gases and Liquids*. New York : John Wiley & Sons, 1964
- [52] HOLLMANN, C. ; GUTHEIL, E.: Flamelet-Modeling of Turbulent Spray Diffusion Flames Based on a Laminar Spray Flame Library. *Combustion Science and Technology* 135 (1998), S. 175–192
- [53] JACKSON, G.S. ; AVEDISIAN, C.T.: The Effect of Initial Diameter in Spherically Symmetric Droplet Combustion of Sooting Fuels. *Proceedings of the Royal Society of London A. Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 446 (1994), S. 255–276
- [54] JACKSON, G.S. ; AVEDISIAN, C.T.: Modeling of Spherically Symmetric Droplet Flames Including Complex Chemistry: Effect of Water Addition on n-Heptane Droplet Combustion. *Combustion Science and Technology* 115 (1996), S. 125–149
- [55] KANG, S.H. ; BAEK, S.W.: Natural Convection Effect on the Droplet Ignition in High Pressure Condition. *Combustion Science and Technology* 164 (2001), S. 279–305
- [56] KAZAKOV, A. ; CONLEY, J. ; DRYER, F.L.: Detailed modeling of an isolated, ethanol droplet combustion under microgravity conditions. *Combustion and Flame* 134 (2003), S. 301–314
- [57] KOCH, R. ; MAAS, U.: Selbstentzündung von Brennstoffsprühstrahlen in Heißgasströmungen. In: *Sonderforschungsbereich 606: Forschungsbericht*. Universität Karlsruhe, 2004, S. 289–312
- [58] KUO, K.K.: *Principles of combustion*. New York : A Wiley Interscience publication, 1986
- [59] LAW, C.K.: Multicomponent Droplet Combustion with Rapid Internal Mixing. *Combustion and Flame* 26 (1976), S. 219–233
- [60] LAW, C.K.: Recent Advances in Droplet Vaporization and Combustion. *Progress in Energy and Combustion Science* 8 (1982), S. 171–201
- [61] LAW, C.K. ; WILLIAMS, F.A.: Kinetics and Convection in the Combustion of Alkane Droplets. *Combustion and Flame* 19 (1972), S. 393–405
- [62] LEE, J.C. ; YETTER, R.A. ; DRYER, F.L.: Transient Numerical Modeling of Carbon Particle Ignition and Oxidation. *Combustion and Flame* 101 (1995), S. 387–398
- [63] LEE, K.-O. ; MANZELLO, S.L. ; CHOI, M.Y.: The Effects of Initial Diameter on Sooting and Burning Behavior of Isolated Droplets under Microgravity Conditions. *Combustion Science and Technology* 132 (1998), S. 139–156

- [64] LIBBY, P.A. ; BLAKE, T.R.: Burning Carbon Particles in the Presence of Water Vapor. *Combustion and Flame* 41 (1981), S. 123–147
- [65] LIPP, S.: *Eindimensionale Modellierung von Tropfenzündung*, Institut für Technische Thermodynamik, Universität Karlsruhe, Diplomarbeit, 2004
- [66] MAAS, U.: *Mathematische Modellierung instationärer Verbrennungsprozesse unter Verwendung detaillierter chemischer Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 1988
- [67] MAAS, U. ; POPE, S.B.: Implementation of Simplified Chemical Kinetics Based on Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. *Proceedings of the Combustion Institute* 24 (1992), S. 103–112
- [68] MAAS, U. ; POPE, S.B.: Simplifying Chemical Kinetics: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space. *Combustion and Flame* 88 (1992), S. 239–264
- [69] MAAS, U. ; WARNATZ, J.: Ignition processes in Carbon Monoxide-Hydrogen-Oxygen Mixtures. *Proceedings of the Combustion Institute* 22 (1988), S. 1695–1704
- [70] MAAS, U. ; WARNATZ, J.: Ignition Processes in Hydrogen-Oxygen Mixtures. *Combustion and Flame* 74 (1988), S. 53–69
- [71] MAKINO, A. ; LAW, C.K.: On the Controlling Parameter in the Gasification Behavior of Multicomponent Droplets. *Combustion and Flame* 73 (1988), S. 331–336
- [72] MARCHESE, A.J. ; DRYER, F.L.: The Effect of Liquid Mass Transport on the Combustion and Extinction of Bicomponent Droplets of Methanol and Water. *Combustion and Flame* 105 (1996), S. 104–122
- [73] MARCHESE, A.J. ; DRYER, F.L. ; COLANTONIO, R.O. ; NAYAGAM, V.: Microgravity Combustion of Methanol and Methanol/Water Droplets: Drop Tower Experiments and Model Predictions. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1209–1217
- [74] MARCHESE, A.J. ; DRYER, F.L. ; NAYAGAM, V.: Numerical Modeling of Isolated n-Alkane Droplet Flames: Initial Comparisons With Ground and Space-Based Microgravity Experiments. *Combustion and Flame* 116 (1999), S. 432–459
- [75] MARINOV, N.M.: A Detailed Chemical Kinetic Model for High Temperature Ethanol Oxidation. *International Journal of Chemical Kinetics* 31 (1999), S. 183–220
- [76] MEGARIDIS, C.M. ; SIRIGNANO, W.A.: Multicomponent Droplet Vaporization in a Laminar Convective Environment. *Combustion Science and Technology* 87 (1992), S. 27–44

- [77] MEIER ZU KÖCKER, H.: Zündverzugszeit von Brennstoff-Tropfen. *Chemie-Ingenieur-Technik* 39 (1967), S. 415–421
- [78] MITCHELL, R.E. ; KEE, R.J. ; GLARBORG, P. ; COLTRIN, M.E.: The Effect of CO Conversion in the Boundary Layers Surrounding Pulverized-Coal Char Particles. *Proceedings of the Combustion Institute* 23 (1990), S. 1169–1176
- [79] MORIUE, O. ; EIGENBROD, C. ; RATH, H.J. ; SATO, J. ; OKAI, K. ; TSUE, M. ; KONO, M.: Effects of Dilution by Aromatic Hydrocarbons on Staged Ignition Behavior of n-Decane Droplets. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 969–975
- [80] MORIUE, O. ; MIKAMI, M. ; KOJIMA, K. ; EIGENBROD, C.: Numerical Simulations of the Ignition of n-Heptane Droplets in the Transition Diameter Range from Heterogeneous to Homogeneous Ignition. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 1973–1980
- [81] MORLEY, C.: Gaseq - A Chemical Equilibrium Program for Windows. <http://www.gaseq.co.uk> (2004)
- [82] MORTIMER, C.E. ; MÜLLER, U.: *Chemie. Das Basiswissen der Chemie.* 8. Aufl. Stuttgart : Thieme, 2003
- [83] NAKANISHI, R. ; KOBAYASHI, H. ; KATO, S. ; NIIOKA, T.: Ignition Experiment of a Fuel Droplet in High-Pressure High-Temperature Ambient. *Proceedings of the Combustion Institute* 25 (1994), S. 447–453
- [84] NAYAGAM, V. ; HAGGARD JR., J.B. ; COLANTONIO, R.O. ; MARCHESE, A.J. ; DRYER, F.L. ; ZHANG, B.L. ; WILLIAMS, F.A.: Microgravity n-Heptane Droplet Combustion in Oxygen-Helium Mixtures at Atmospheric Pressure. *AIAA Journal* 36 (1998), S. 1369–1378
- [85] NETTLETON, M.A. ; STIRLING, R.: The combustion of clouds of coal particles in shock-heated mixtures of oxygen and nitrogen. *Proceedings of the Royal Society of London A. Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 322 (1971), S. 207–221
- [86] NIAZMAND, H. ; SHAW, B.D. ; DWYER, H.A. ; AHARON, I.: Effects of Marangoni Convection on Transient Droplet Evaporation. *Combustion Science and Technology* 103 (1994), S. 219–233
- [87] NOMURA, H. ; UJIIE, Y. ; RATH, H.J. ; SATO, J. ; KONO, M.: Experimental Study on High-Pressure Droplet Evaporation Using Microgravity Conditions. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1267–1273

- [88] OAKLEY, A. ; ZHAO, H. ; LADOMMATOS, N. ; MA, T.: Dilution Effects on the Controlled Auto-Ignition (CAI) Combustion of Hydrocarbon and Alcohol Fuels. *SAE Technical Paper* 2001-01-3606 (2001)
- [89] OERTEL, H.: *Strömungsmechanik*. Braunschweig : Vieweg, 1999
- [90] OKAI, K. ; MORIUE, O. ; ARAKI, M. ; TSUE, M. ; KONO, M. ; SATO, J. ; DIETRICH, D.L. ; WILLIAMS, F.A.: Pressure Effects on Combustion of Methanol and Methanol/Dodecanol Single Droplets and Droplet Pairs in Microgravity. *Combustion and Flame* 121 (2000), S. 501–512
- [91] PETERS, N.: *Turbulent combustion*. Cambridge : Cambridge University Press, 2000
- [92] POINSOT, T. ; VEYNANTE, D.: *Theoretical and Numerical Combustion*. 1. Aufl. Philadelphia : R.T. Edwards, 2001
- [93] POPE, D.N. ; GOGOS, G.: Numerical simulation of fuel droplet extinction due to forced convection. *Combustion and Flame* 142 (2005), S. 89–106
- [94] RAGHAVAN, V. ; GOGOS, G. ; BABU, V. ; SUNDARARAJAN, T.: Effect of gravity on methanol diffusion flames burning within a forced convective environment. *International Communications in Heat and Mass Transfer* 33 (2006), S. 686–697
- [95] RAGHAVAN, V. ; POPE, D.N. ; GOGOS, G.: Effects of Forced Convection and Surface Tension During Methanol Droplet Combustion. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer* 20 (2006), S. 787–798
- [96] RAGHAVAN, V. ; POPE, D.N. ; HOWARD, D. ; GOGOS, G.: Surface tension effects during low-Reynolds-number methanol droplet combustion. *Combustion and Flame* 145 (2006), S. 791–807
- [97] RAH, S.C. ; SAROFIM, A.F. ; BEÉR, J.M.: Ignition and Combustion of Liquid Fuel Droplets - Part I: Impact on Pollutant Formation. *Combustion Science and Technology* 48 (1986), S. 273–284
- [98] RAH, S.C. ; SAROFIM, A.F. ; BEÉR, J.M.: Ignition and Combustion of Liquid Fuel Droplets - Part II: Ignition Studies. *Combustion Science and Technology* 49 (1986), S. 169–184
- [99] RAKOPOULOS, C.D. ; GIAKOUMIS, E.G.: Second-law analyses applied to internal combustion engines operation. *Progress in Energy and Combustion Science* 32 (2006), S. 2–47
- [100] RANZ, W.E. ; MARSHALL, W.R.: Evaporation from drops - I and II. *Chemical Engineering Progress* 48 (1952), S. 141–146 and 173–180

- [101] REID, R.C. ; PRAUSNITZ, J.M. ; POLING, B.E.: *The Properties of Gases and Liquids*. 4. Aufl. McGraw-Hill, 1989
- [102] RICHTMYER, R.D. ; MORTON, K.W.: Difference Methods for Initial Value Problems. In: BERS, I. (Hrsg.) ; COURANT, R. (Hrsg.) ; STOKER, J. (Hrsg.): *Interscience Tracts in Pure and Applied Mathematics No.4*. 2. Aufl. John Wiley & Sons, 1967
- [103] RIEDEL, U.: *Numerische Simulation reaktiver Hyperschallströmungen mit detaillierten Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 1992
- [104] RIEDEL, U. ; MAAS, U. ; WARNATZ, J.: Detailed Numerical Modeling of Chemical and Thermal Nonequilibrium in Hypersonic Flows. *Impact of Computing in Science and Engineering* 5 (1993), S. 20–52
- [105] SAITOH, T. ; ISHIGURO, S. ; NIIOKA, T.: An Experimental Study of Droplet Ignition Characteristics Near the Ignitable Limit. *Combustion and Flame* 48 (1982), S. 27–32
- [106] SCHNAUBELT, S.: *Numerische Analyse des Selbstzündungsverhaltens einzelner Brennstofftropfen*, Universität Bremen, Dissertation, 2005
- [107] SCHNAUBELT, S. ; MORIUE, O. ; COORDES, T. ; EIGENBROD, C. ; RATH, H.J.: Detailed Numerical Simulations of the Multistage Self-Ignition Process of n-Heptane Isolated Droplets and their Verification by Comparison with Microgravity Experiments. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 953–960
- [108] SCHNELL, U.: *Wirkungsgradoptimierte Kraftwerkstechnologien zur Stromerzeugung aus fossilen Brennstoffen*. VDI-Verlag, 1998
- [109] SCHUBERT, A.: *Verdunstung und Zündung von Einzeltropfen*, Institut für Technische Verbrennung, Universität Stuttgart, Diplomarbeit, 2003
- [110] SHAW, B.D. ; DWYER, H.A. ; WEI, J.B.: Studies on Combustion of Single and Double Streams of Methanol and Methanol/Dodecanol Droplets. *Combustion Science and Technology* 174 (2002), S. 29–50
- [111] SHAYGAN, N. ; PRAKASH, S.: Droplet Ignition and Combustion Including Liquid-Phase Heating. *Combustion and Flame* 102 (1995), S. 1–10
- [112] SIEGEL, R. ; HOWELL, J.R.: *Thermal Radiation Heat Transfer*. 2. Aufl. McGraw-Hill, 1981
- [113] SIRIGNANO, W.A.: Fuel droplet vaporization and spray combustion theory. *Progress in Energy and Combustion Science* 9 (1983), S. 291–322

- [114] SIRIGNANO, W.A.: *Fluid dynamics and transport of droplets and sprays*. Cambridge : Cambridge University Press, 1999
- [115] SKINNER, F.D. ; SMOOT, L.D.: Heterogeneous Reactions of Char and Carbon. In: SMOOT, L.D. (Hrsg.) ; PRATT, D.T. (Hrsg.): *Pulverized-Coal Combustion and Gasification*. New York : Plenum Press, 1979
- [116] SPICHER, U. ; REISSING, J. ; KECH, J.M. ; GINDELE, J.: Gasoline Direct Injection (GDI) Engines - Development Potentialities. *SAE Paper 1999-01-2938* (1999)
- [117] STAHL, G.: *Rechnerische Simulation stationärer und instationärer gestreckter Methan- und Propan-Luft Flammen unter Verwendung detaillierter Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 1989
- [118] STAPF, P.: *Modellierung der Tröpfchenverbrennung unter Einschluß detaillierter chemischer Reaktion*, Universität Stuttgart, Dissertation, 1992
- [119] STAPF, P. ; DWYER, H.A. ; MALY, R.R.: A Group Combustion Model for Treating Reactive Sprays in I.C. Engines. *Proceedings of the Combustion Institute* 27 (1998), S. 1857–1864
- [120] STAUCH, R. ; LIPP, S. ; MAAS, U.: Detailed Numerical Simulation of Droplet Combustion. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting*. Louvain-la-Neuve, Belgium, 2005
- [121] STAUCH, R. ; LIPP, S. ; MAAS, U.: Detailed numerical simulation of the auto-ignition of liquid fuel droplets. In: SHOKIN, Y. (Hrsg.) ; RESCH, M. (Hrsg.) ; DANAIEV, N. (Hrsg.) ; ORUNKHANOV, M. (Hrsg.) ; SHOKINA, N. (Hrsg.): *Advances in High Performance Computing and Computational Sciences*. Berlin : Springer, 2006 (Notes on Numerical Fluid Mechanics and Multidisciplinary Design), S. 127–137
- [122] STAUCH, R. ; LIPP, S. ; MAAS, U.: Detailed numerical simulations of the auto-ignition of single n-heptane droplets in air. *Combustion and Flame* 145 (2006), S. 533–542
- [123] STAUCH, R. ; MAAS, U.: The auto-ignition of single n-heptane/iso-octane droplets. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 50 (2007), S. 3047–3053
- [124] STAUCH, R. ; MAAS, U.: Different Ignition Modes of n-Heptane Droplets in Air. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting*. Crete, Greece, 2007
- [125] STEGER, J.L. ; WARMING, R.F.: Flux Vector Splitting of the Inviscid Gasdynamic Equations with Application to Finite-Difference Methods. *Journal of Computational Physics* 40 (1981), S. 263–293

- [126] STÖCKER, H.: *Taschenbuch der Physik*. 3. Aufl. Frankfurt : Harri Deutsch, 1998
- [127] TAKEI, M. ; TSUKAMOTO, T. ; NIIOKA, T.: Ignition of Blended-Fuel Droplet in High-Temperature Atmosphere. *Combustion and Flame* 93 (1993), S. 149–156
- [128] TANABE, M. ; BOLIK, T. ; EIGENBROD, C. ; RATH, H.J. ; SATO, J. ; KONO, M.: Spontaneous Ignition of Liquid Droplets from a View of Non-Homogeneous Mixture Formation and Transient Chemical Reactions. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1637–1643
- [129] TANABE, M. ; KONO, M. ; SATO, J. ; KOENIG, J. ; EIGENBROD, C. ; DINKELACKER, F. ; RATH, H.J.: Two Stage Ignition of n-Heptane Isolated Droplets. *Combustion Science and Technology* 108 (1995), S. 103–119
- [130] THOMPSON, J.F. ; THAMES, F.C. ; MASTIN, C.W.: Boundary-Fitted Curvilinear Coordinate System for Solution of Partial Differential Equations on Fields Containing Any Number of Arbitrary Two-Dimensional Bodies. *NASA Contractor Report* 2729 (1977)
- [131] THOMPSON, J.F. ; THAMES, F.C. ; MASTIN, C.W.: TOMCAT – A Code for Numerical Generation of Boundary-Fitted Curvilinear Coordinate Systems on Fields Containing Any Number of Arbitrary Two-Dimensional Bodies. *Journal of Computational Physics* 24 (1977), S. 274–302
- [132] TSAI, J.S. ; STERLING, A.M.: The Combustion of Linear Droplet Arrays. *Proceedings of the Combustion Institute* 23 (1990), S. 1405–1411
- [133] TSUKAMOTO, T. ; OKADA, H. ; NIIOKA, T.: Ignition Simulation of a Fuel Droplet in High-Pressure High-Temperature Atmosphere. *Japan Society for Aeronautical and Space Sciences, Transactions* 35 (1993), S. 165–176
- [134] VDI-GESELLSCHAFT VERFAHRENSTECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN: *VDI-Wärmeatlas*. 7. Aufl. VDI-Verlag, 1994
- [135] VELJI, A. ; GÜNTNER, M. ; SPICHER, U.: Direkteinspritzung im Ottomotor mit Fremd- und Kompressionszündung - Brennverfahren der Zukunft? In: *Haus der Technik e.V.-Tagung*. Essen, 2003
- [136] VERBAND DER AUTOMOBILINDUSTRIE E.V.: *Auto Jahresbericht 2006*. 2006
- [137] VIEILLE, B. ; CHAUVEAU, C. ; CHESNEAU, X. ; ODEIDE, A. ; GÖKALP, I.: High-Pressure Droplet Burning Experiments in Microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute* 26 (1996), S. 1259–1265

- [138] WARNATZ, J. ; MAAS, U. ; DIBBLE, R.W.: *Combustion*. 3. Aufl. Berlin : Springer, 2001
- [139] WHANG, J.-J. ; YUKAO, C.-Y. ; HO, J.-T. ; WONG, S.-C.: Experimental Study of the Ignition of Single Droplets under Forced Convection. *Combustion and Flame* 110 (1997), S. 366–376
- [140] WILLIAMS, F.A.: *Combustion Theory*. 2. Aufl. Philadelphia : Perseus, 1985
- [141] WONG, S.-C. ; LIAO, X.-X. ; YANG, J.-R.: A Simplified Theory of the Ignition of Single Droplets under Forced Convection. *Combustion and Flame* 110 (1997), S. 319–334
- [142] YAN, X.: *Numerische Simulation und Zeitskalenanalyse katalytischer Verbrennung*. Stuttgart, Dissertation, 2001
- [143] YANG, J.-R. ; YUKAO, C.-Y. ; WHANG, J.-J. ; WONG, S.-C.: Experiments on the Ignition of Monocomponent and Bicomponent Fuel Droplets in Convective Flow. *Combustion and Flame* 123 (2000), S. 266–274
- [144] YAWS, C.L.: *Chemical Properties Handbook*. New York : McGraw-Hill, 1999
- [145] YOUNG, B.C. ; SMITH, I.W.: The Kinetics of Combustion of Petroleum Coke Particles at 1000 to 1800 K: The Reaction Order. *Proceedings of the Combustion Institute* 18 (1981), S. 1249–1255
- [146] ZHAO, F. ; LAI, M.-C. ; HARRINGTON, D.L.: Automotive spark-ignited direct-injection gasoline engines. *Progress in Energy and Combustion Science* 25 (1999), S. 437–562

# Danksagung

Mein Dank gilt zahlreichen Personen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. An erster Stelle gebührt der Dank meinem Betreuer Prof. Dr. Ulrich Maas für die interessante Aufgabenstellung sowie seine stetige Diskussionsbereitschaft und die daraus resultierenden wertvollen Tips.

PD Dr.-Ing. Andreas Class danke ich für die Übernahme des Korreferats und sein Interesse an dieser Arbeit.

Weiterhin möchte ich meinen Kollegen am ITV in Stuttgart und am ITT in Karlsruhe für die außerordentlich freundliche und kollegiale Arbeitsatmosphäre danken. Insbesondere danke ich meinem Zimmerkollegen Alexander Schubert für seine Unterstützung und die Selbstverständlichkeit, mit der er mir jegliche Hilfe zukommen ließ.

Des weiteren gilt mein spezieller Dank meinen Kollegen Stefan Lipp, Dr. Dietmar Schmidt, Dr.-Ing. Robert Schießl sowie Mark Scherr für die Hilfe bei der Weiterentwicklung der Simulationstools sowie die produktiven Diskussionen über die verschiedenen Aspekte von Verbrennungsprozessen.

Florian Zieker danke ich für die unzähligen Male, die er mir "seinen" Windows-Rechner zur Benutzung überließ.

Meinen Studien-, Diplomarbeitern und HiWis danke ich für die Beiträge zur Weiterentwicklung der Simulationstools und der Durchführung etlicher Simulationen. Insbesondere danke ich Stefan Lipp und Ralf Emig für die Implementierung der Routinen zur Berechnung der Stoffeigenschaften in der flüssigen Phase.

Bei Dr.-Ing. Peter Lammers vom HLRS Stuttgart möchte ich mich für die im Rahmen des TeraFlop Workbench durchgeführte Portierung von FLAME2D auf die NEC SX-8 und die Optimierung des Codes bedanken.

Mein größter Dank jedoch gilt meiner lieben Anja sowie Inge und Peter für die liebevolle Unterstützung, ihr Verständnis und die Geduld, die sie mit mir hatten.

Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 606 - Teilprojekt B5 "Selbstentzündung von Brennstoffsprühstrahlen in Heißgasströmungen" finanziell gefördert sowie durch das Höchstleistungsrechenzentrum Stuttgart (HLRS) durch die Bereitstellung von Rechenzeit unterstützt.

# Lebenslauf

## Personalien

Name Rainer Matthias Stauch

Geburtsdatum 17. November 1976

Geburtsort Leonberg

Familienstand verheiratet

## Werdegang

1983 – 1987 Grundschule, Münklingen

1987 – 1996 Johannes Kepler-Gymnasium, Weil der Stadt

1996 – 1997 Zivildienst im Seniorenzentrum am Parksee, Leonberg

1997 – 2003 Studium der Physik, Universität Stuttgart

2003 – 2004 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Technische Verbrennung (ITV), Universität Stuttgart

2005 – 2007 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Technische Thermodynamik (ITT), Universität Karlsruhe (TH)

seit 2007 Angestellter der Behr GmbH & Co. KG, Stuttgart



