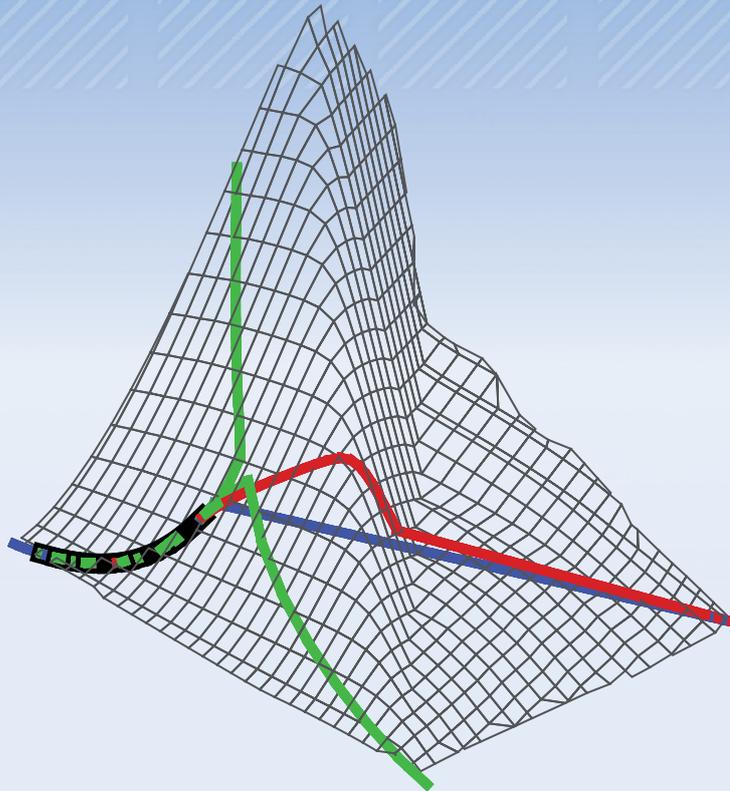


Karin König

# Hierarchische Implementierungsstrategien für reduzierte Reaktions- mechanismen basierend auf Intrinsischen Niedrigdimen- sionalen Mannigfaltigkeiten





Karin König

**Hierarchische Implementierungsstrategien für reduzierte  
Reaktionsmechanismen basierend auf Intrinsischen  
Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten**



# **Hierarchische Implementierungs- strategien für reduzierte Reaktions- mechanismen basierend auf Intrinsischen Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten**

von  
Karin König



---

universitätsverlag karlsruhe

Dissertation, Universität Karlsruhe (TH)  
Fakultät für Maschinenbau, 2008

## Impressum

Universitätsverlag Karlsruhe  
c/o Universitätsbibliothek  
Straße am Forum 2  
D-76131 Karlsruhe  
www.uvka.de



Dieses Werk ist unter folgender Creative Commons-Lizenz  
lizenziert: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/2.0/de/>

Universitätsverlag Karlsruhe 2008  
Print on Demand

ISBN: 978-3-86644-302-0





**Hierarchische Implementierungsstrategien  
für reduzierte Reaktionsmechanismen  
basierend auf Intrinsischen  
Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten**

Zur Erlangung des akademischen Grades

**Doktor der Ingenieurwissenschaften**

der Fakultät für Maschinenbau

Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

**Dissertation**

von Dipl.-Ing. Karin König

Tag der mündlichen Prüfung: 29. September 2008

Hauptreferent: Prof. Dr.rer.nat. habil. U. Maas

Koreferent: Prof. Dr.-Ing. U. Spicher



# Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	V
Abstract	XIII
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Verfahren zur Reduktion von Reaktionsmechanismen</b>	<b>7</b>
<b>3 Intrinsische Niedrigdimensionale Mannigfaltigkeiten</b>	<b>13</b>
3.1 Dynamik reaktiver Strömungen und Grundidee der ILDM-Methode	13
3.2 Mathematisches Modell . . . . .	17
3.2.1 ILDM-Gleichungen . . . . .	17
3.2.2 Parametrisierung der ILDM . . . . .	19
3.3 Numerisches Verfahren . . . . .	21
3.4 Hierarchische Generierung . . . . .	22
3.5 Implementierung von ILDMs in Flammenrechnungen . . . . .	24
3.5.1 Behandlung des Bereichs langsamer Chemie . . . . .	24
3.5.2 Generalisierte Koordinaten . . . . .	26
3.5.3 Implementierung . . . . .	27
3.6 Entwicklungspotentiale . . . . .	31

---

<b>4</b>	<b>Sensitivitäten von ILDMs im Hinblick auf kinetische Daten</b>	<b>35</b>
4.1	Mathematisches Modell . . . . .	36
4.2	Vergleich der ILDM-Sensitivität mit der eines perfekten Rührreaktors . . . . .	39
4.3	Ergebnisse . . . . .	41
4.4	Zusammenfassung . . . . .	46
<b>5</b>	<b>Hierarchische Erweiterung von ILDMs</b>	<b>49</b>
5.1	Modell für die hierarchische Erweiterung . . . . .	50
5.2	Ergebnisse von Flammenrechnungen mit hierarchisch erweiterten ILDMs . . . . .	55
5.2.1	Synthesegas/Luft-System . . . . .	56
5.2.2	Methan/Luft-System . . . . .	63
5.3	Zusammenfassung . . . . .	68
<b>6</b>	<b>On-demand Generierung von ILDMs</b>	<b>71</b>
6.1	Algorithmus für die on-demand Generierung von ILDMs . . . . .	73
6.2	Ergebnisse . . . . .	77
6.3	Zusammenfassung . . . . .	83
<b>7</b>	<b>Dynamik periodisch gestörter Gegenstromflammen</b>	<b>85</b>
7.1	Einleitung . . . . .	85
7.2	Modell für die Flammenrechnungen . . . . .	87
7.3	Ergebnisse der Flammenrechnungen . . . . .	91
7.3.1	Ausbreitung der Störung . . . . .	92
7.3.2	Spezieskorrelationen im Zustandsraum . . . . .	97

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	III
7.4 Zeitskalenanalysen im ILDM-Kontext . . . . .	99
7.4.1 Vorgehensweise . . . . .	99
7.4.2 Ergebnisse der ILDM-basierten Zeitskalenanalysen . . . . .	102
7.5 Zeitskalenanalysen im REDIM-Kontext . . . . .	106
7.5.1 Mathematisches Modell . . . . .	106
7.5.2 Ergebnisse der REDIM-basierten Zeitskalenanalysen . . . . .	110
7.6 Elementzusammensetzung . . . . .	112
7.7 Zusammenfassung . . . . .	115
<b>8 Zusammenfassung, Ausblick</b>	<b>117</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>123</b>



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Anteile verschiedener Energieträger, die 2006 zur Deckung des weltweiten Primärenergieverbrauchs eingesetzt wurden, angegeben in Millionen Tonnen Öläquivalent; Daten aus [18]. Dabei sind nur Brennstoffe berücksichtigt, für die zuverlässige Daten vorliegen; nicht erfasst sind zum Beispiel Holz und Biomasse. . . . .	2
1.2	Primärenergieverbrauch in den Jahren 1996 bis 2006 in Millionen Tonnen Öläquivalent; Daten aus [18]. . . . .	3
1.3	Reale und prognostizierte CO <sub>2</sub> -Emissionen weltweit für die Jahre 1990 bis 2030; Daten aus [64]. . . . .	4
3.1	Zeitskalen chemischer und physikalischer Prozesse bei Verbrennungsvorgängen. . . . .	14
3.2	Trajektorien des stöchiometrischen Methan/Luft-Systems, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Ebenfalls eingetragen ist das chemische Gleichgewicht (Kreis). Druck 1 bar, Temperatur im Unverbrannten 298 K. . . . .	15
3.3	Implementierung einer ILDM-Tabelle in einem Programm zur Flammenrechnung. . . . .	30

- 4.1 1d-ILDMS und Sensitivitäten für das stöchiometrische Synthesegas/Luft-System, dargestellt als Projektion des Zustandsraumes in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene. Schwarze Linie: 1d-ILDM; Pfeile: Sensitivitäten der 1d-ILDM im Hinblick auf die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  für eine Erhöhung des Geschwindigkeitskoeffizienten um 50%; schwarz gepunktete Linie: 1d-ILDM, berechnet für einen um 50% erhöhten Geschwindigkeitskoeffizienten der Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$ . . . . . 42
- 4.2 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems, dargestellt als graue Fläche im  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O-OH}$ -Raum. Die Pfeile sind die Sensitivitäten der ILDM gegenüber der um 50% gestörten Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  (Pfeile mit gemeinsamem Faktor skaliert, Farben dienen nur der besseren Anschauung). . . . . 43
- 4.3 Ergebnisse einer Sensitivitätsanalyse der 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems. Dargestellt ist die relative Sensitivität des OH-Radikals. . . . . 44
- 4.4 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems, projiziert in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene mit den Sensitivitäten bezüglich des OH-Radikals (siehe Legende für die Zuordnung der Farben zu den Sensitivitätswerten; Angaben in mol/kg). Linke Abbildung: Sensitivitäten für die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$ . Zusätzlich sind eine Trajektorie (magenta) und zwei ihrer Sensitivitäten (schwarze Pfeile, skaliert mit einem gemeinsamen Faktor) eingetragen. Rechte Abbildung: Wie links, aber für die Reaktion  $\text{CO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$  angegeben. Die Trajektorien (schwarz) zeigen den Reaktionsfortschritt. . . . . 45
- 5.1 Schematische Darstellung der hierarchischen Erweiterung. Die 1d-ILDM (schwarze Linie) wird ab dem Kreis hierarchisch erweitert (gestrichelte Linie) und folgt damit dem Verlauf der 2d-ILDM (graue Fläche). . . . . 51

5.2	Vergleich verschiedener ILDMs des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems. 1d-ILDMs (schwarz und grün) ohne Erweiterung, einstufig erweiterte 1d-ILDM (blau), zweistufig erweiterte ILDM (rot) und einstufig erweiterte 2d-ILDM (schwarzes Gitter).	56
5.3	Relaxierte Moden (durchgezogene Linie mit gefüllten Symbolen) in einer freien stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Flamme und Verlauf der Spezies $H_2O$ (gestrichelte Linie); detaillierte Rechnung. Eingetragen sind die Bereiche, in denen 1d-, 2d- und 3d-ILDMs zur Beschreibung des Systems innerhalb einer Fehlertoleranz von 5% ausreichen. . . . .	58
5.4	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Reduzierte Lösungen basierend auf einstufig (rot), zweistufig (grün) und dreistufig (blau) hierarchisch erweiterten 1d-ILDMs. Detaillierte Lösung (schwarz). . . .	59
5.5	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMs, dargestellt für verschiedene Spezies über der Ortskoordinate. Rot: Lösung basierend auf einer einstufig erweiterten 2d-ILDM ( $x = n_f$ ). Grün: Lösung basierend auf einer zweistufig erweiterten ILDM ( $x = 1, x = n_f$ ). Schwarz: Detaillierte Lösung. . . . .	60
5.6	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMs, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Farben wie in Abbildung 5.5. . . . .	61
5.7	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMs, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Farben wie in Abbildung 5.5. . . . .	62

5.8	Relaxierte Moden (durchgezogene Linie mit gefüllten Symbolen) in einer freien stöchiometrischen Methan/Luft-Flamme und Verlauf der Spezies $\text{H}_2\text{O}$ (gestrichelte Linie); detaillierte Rechnung. Eingetragen sind die Bereiche, in denen 1d- und 2d-ILDMS zur Beschreibung des Systems innerhalb einer Fehlertoleranz von 5% ausreichen. Der nicht bezeichnete Bereich links des 2d-Bereiches entspricht dem Bereich, in dem 3d-ILDMS verwendet wurden. . . . .	63
5.9	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Methan/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Rot: Lösung für eine einstufig erweiterte 2d-ILDMS. Grün: Lösung für eine zweistufig erweiterte 2d-ILDMS. Schwarz: Detaillierte Lösung. . . . .	64
5.10	Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Methan/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Rot: Lösung für eine einstufig erweiterte 2d-ILDMS. Grün: Lösung für eine zweistufig erweiterte 2d-ILDMS. Schwarz: Detaillierte Lösung. . . . .	65
5.11	Wie Abbildung 5.9, wobei in Blau zusätzlich die stationäre Lösung einer Flammenrechnung mit verkürztem ( $x = 1$ )-Anteil eingetragen ist. . . . .	66
5.12	Dreidimensionale Projektion des Zustandsraumes in die Koordinaten $\text{CO}_2$ , $\text{H}_2\text{O}$ und $\text{H}$ . Rot: 2d-ILDMS mit einstufiger Erweiterung. Blau: Zweistufig erweiterte 2d-ILDMS. Schwarz: Stationäre, detaillierte Lösung. Grün: Trajektorien des stöchiometrischen Methan/Luft-Systems für verschiedene Anfangszustände. . . . .	67
5.13	Dreidimensionale Projektion des Zustandsraumes in die Koordinaten $\text{CO}_2$ , $\text{H}_2\text{O}$ und $\text{H}_2$ . Farben wie in Abbildung 5.12. . . . .	68
6.1	Implementierungsschema zur on-demand Generierung von ILDMs.	74

6.2	Projektionen des Zustandsraumes in die CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O-Ebene; stöchiometrische, flache Synthesegas/Luft-Flamme. a) Orange: 1d-ILDM, zweistufig hierarchisch erweitert; schwarze Linien: Anfangsprofil und stationäre Lösung der ersten Flammenrechnung mit der 1d-ILDM; Symbole: Detaillierte, stationäre Lösung. b) 1d-ILDM nach Entfernung des ( $x = n_f$ )-Anteils der Erweiterung. c) Eine Zellreihe der 2d-ILDM nach hierarchischer Generierung. d) 2d-ILDM (cyan) mit ( $x = n_f$ )-Erweiterung und Startprofil für die zweite Flammenrechnung (schwarz). . . . .	79
6.3	Projektionen des Zustandsraumes in die CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O-Ebene; stöchiometrische, flache Synthesegas/Luft-Flamme. a) 2d-ILDM (cyan) und Flammentrajektorien (schwarz) nach erster on-demand Zelleaddition, $t \leq 7,7 \cdot 10^{-6}$ s. b) 2d-ILDM und Flammentrajektorien nach $t \leq 1,1 \cdot 10^{-5}$ s. c) 2d-ILDM und Flammentrajektorien nach Erreichen der stationären Lösung der zweiten Flammenrechnung. d) Relative Änderungen der Ergebnisse für die Spezies H <sub>2</sub> O und OH, Details siehe Legende. . . . .	80
6.4	Projektionen des Zustandsraumes in den CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O-OH-Raum; grau: Vollständige 2d-ILDM, schwarz: On-demand generierte Tabelle der freien Synthesegas/Luft-Flamme. . . . .	82
7.1	Schematische Darstellung einer rotationssymmetrischen Gegenstromanordnung mit Ausbildung einer Zwillingsflamme im vorgemischten Fall. Ebenfalls eingetragen ist das Rechengebiet der durchgeführten Simulationen. . . . .	87
7.2	Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertes Gemischzusammensetzung; Mittelwert der Störung $\phi = 1,0$ , $\hat{w} = 0,10 \cdot \bar{w}$ des Mittelwerts; Frequenzen 20, 250, 500, 1000 Hz (von oben nach unten). Linke Seite: Zeitlicher und räumlicher Verlauf der Spezies CH <sub>4</sub> ; rechte Seite: Räumlicher Verlauf von CH <sub>4</sub> für verschiedene Zeitpunkte. . . . .	93

- 7.3 Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20, 500, 1000, 2000 Hz;  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die Strömungsgeschwindigkeit über der Ortskoordinate für verschiedene Zeitpunkte während einer vollen Störungsperiode. . . . . 95
- 7.4 Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20, 500, 1000, 2000 Hz;  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die maximale Änderung der Flammengeschwindigkeit (jeweils normiert mit ihrem Randwert) über der Ortskoordinate. . . . . 96
- 7.5 Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20 (schwarz), 250 (rot), 500 (blau), 1000 Hz (grün);  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die Strömungsgeschwindigkeit über der Ortskoordinate für verschiedene Zeitpunkte innerhalb einer vollen Störungsperiode. . . . 98
- 7.6 Ergebnisse von ILDM-basierten Analysen stationärer Flammen mit  $\phi = 1,0$  (rot),  $\phi = 0,9$  (grün) und  $\phi = 1,1$  (blau). Links: Realanteile der 15 größten Eigenwerte. Für die logarithmische Darstellung wurden die Realanteile mit dem gemeinsamen Faktor  $-1$  multipliziert. Rechts: Anzahl der relaxierten Moden mit  $\epsilon \leq 5\%$ . . . . . 103
- 7.7 Anzahl relaxierter Moden (ermittelt mit  $\epsilon \leq 5\%$ ) ungestörter und gestörter Flammen. Rote Linien: Relaxierte Moden einer ungestörten Flamme beim Mittelwert der entsprechenden gestörten Flamme. Farbige Symbole: Relaxierte Moden der gestörten Flamme zu unterschiedlichen Zeitpunkten innerhalb einer vollen Störungsperiode. Links: Ungestörte Flamme bei  $\phi = 1,0$  und Flamme mit Störung der Gemischzusammensetzung (500 Hz, 10% Amplitude). Rechts: Ungestörte Flamme mit  $J = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  und Flamme mit Störung des Strömungsfeldes (500 Hz, 50% Amplitude). . . . 104

---

7.8	Schematische Darstellung einer Mannigfaltigkeit (gestrichelte Linie) und von Punkten im Zustandsraum mit großer (links) und kleiner Entfernung (rechts) zur Mannigfaltigkeit. Außerdem sind die für die Systemdynamik bestimmenden Prozesse und der Winkel $\alpha$ eingetragen. . . . .	109
7.9	Winkel gemäß Gleichung (7.29) für eine stationäre Flamme mit $\phi = 1,0$ und $J = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ bei verschiedener Anzahl kontrollierender Variabler (siehe Legende). . . . .	111
7.10	Winkel gemäß Gleichung (7.29) für Flammen unter Einfluss einer Störung der Gemischzusammensetzung (links; 500 Hz, 10% Amplitude) und des Strömungsfeldes (rechts, 500 Hz, 50% Amplitude) zu verschiedenen Zeitpunkten während einer Störungsperiode (verschiedene Farben) und unterschiedlicher Anzahl kontrollierender Variabler (Symbole wie in Abbildung 7.9). . . . .	112
7.11	Vergleich der Elementzusammensetzungen in stationären Flammen (44 Flammen mit $\phi = 0,88$ bis $\phi = 1,1$ ; dargestellt als hellgraue Fläche mit schwarzem Rand) und in einer instationären Flamme mit einer Störung der Gemischzusammensetzung (500 Hz, Amplitude 10%; dargestellt als farbige Symbole). Die Farben geben den Abstand zur Fläche an, siehe Legende. . . . .	114



# Abstract

Combustion processes have been of significant importance to mankind for thousands of years and will remain in their outstanding position in the future. Even though, the problems of combustion processes have come into the focus of the public in the last years, with two central issues being discussed intensively. One of those issues is the environmental aspect: Greenhouse gases like  $\text{CO}_2$ , pollutants like  $\text{NO}_x$  or particles, which are all resulting from combustion, have a negative impact on both the earth atmosphere and on human health. The second issue is the increasing demand for technical combustion systems in developing countries in combination with the fast growth of the world population - a combination which is supposed to yield a shortage in the non-renewable primary energy sources like gas and oil in the near future. Thus, achieving a decrease in the emissions and an increase in the efficiency of combustion systems is one of the most urgent tasks to be solved. This can only be done based on an in-depth knowledge of the underlying chemical and physical processes respectively their complex interaction. A powerful tool to gain this knowledge is numerical simulation, which allows to investigate combustion processes in a wide range of parameters. Yet, there is a drawback: Even though the power of computer systems has increased dramatically over the years, the simulation of a practical combustion system in all detail is still too expensive or even prohibitive. One of the reasons - beyond e. g. complex flows and geometries - are the characteristics of the equation systems describing the underlying chemical kinetics: With their high dimension, high stiffness and the non-linearity of the chemical source terms, they require either very demanding solution procedures or a method of simplification. Models to simplify the chemical kinetics have been developed intensively (for an overview see e. g. [130], [134]). One of those methods are the Intrinsic Low-Dimensional Manifolds (ILDM, [88], [89]), which are used in this work. Details on the method

including the mathematical model, the numerical calculation and implementation of ILDMs into reactive flow calculations are discussed in Chapter 3. Remaining questions and potentials for further development of the methodology are addressed in this work and should be summarized here shortly.

Beside the ILDM dimension, the detailed mechanism is the only input into the procedures for calculating an ILDM. Thus, it is of interest to know, how uncertainties in the detailed mechanism (resulting e. g. from measurements of the kinetic data) affect ILDMs. In Chapter 4, an algorithm for a sensitivity analysis of ILDMs with respect to kinetic data is presented, which allows to estimate the influence of changes in the detailed mechanism onto ILDMs. A comparison between the sensitivity of an ILDM and of a perfectly stirred reactor is discussed as well as sample results.

A second issue that is addressed in this work is, how ILDMs can be continued into those regions of state space, where chemistry is slow and where an ILDM of low dimension does either not exist or is not attractive. Within the new approach presented in Chapter 5 it is possible to extend a low-dimensional ILDM into the slow chemistry domain by exploiting the hierarchical structure of ILDMs (see [96], [99] and Chapter 3.4) and by adding constraints that force a movement along a geodasic on these higher-dimensional manifolds (which allows a tabulation of the extension in the dimension of the original ILDM). Beside the mathematical model, sample results for syngas/air- and methane/air-flames are discussed to verify the approach.

The third issue is the implementation of ILDMs into reactive flow calculations. Previously, ILDM-tables were calculated before the reactive flow calculation, in which the tables were used as lookup tables only. As normally no *a priori* knowledge about the accessed region in state space is used, the pre-calculated tables had thus to be calculated for their whole domain of existence. As this domain is much larger than the actually accessed one, CPU-time and storage capacity are unnecessarily used. Also, a fixed, *a priori* determined table dimension had to be used and no error control was available. The on-demand algorithms presented in Chapter 6 overcome the named drawbacks by calculating the ILDM-table on demand during the reactive flow calculation. Also, the ILDM-dimension can be increased automatically after the first reactive flow calculation is finished. Its result is then re-calculated by using a higher-dimensional table; finally, an error estimation is performed. By using efficient tools like generalized coordinates, the hierarchical generation of ILDMs and hierarchically extended ILDMs, the

algorithm is not only very efficient, but also ensures an ideal adjustment of the used ILDMs to the dynamics of the system. The algorithm is validated for the stoichiometric syngas/air- and methane/air-systems and it is shown, that a clear reduction of needed storage capacity and CPU time is achieved.

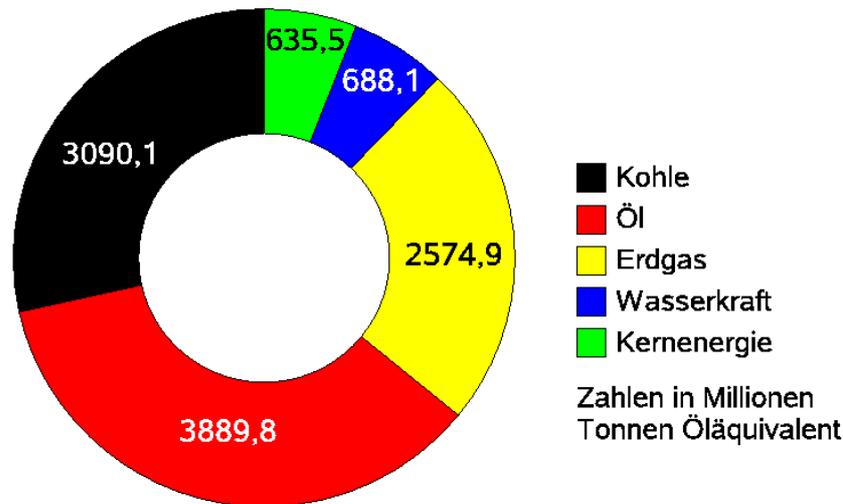
The ILDM method has previously been applied to many different flame types. A flame type that has not yet been investigated in the context of ILDM are flames subjected to periodical perturbations of the inflow mixture composition and the flow field. Chapter 7 discusses such perturbed flames. First, the perturbation behaviour is analysed, afterwards different analyses of the flames are performed. Timescale analyses are not only done within the ILDM-method, they are also done with a new algorithm based on the REDIM-method (Reaction-Diffusion Manifolds, see e. g. [27] and further references given in Chapter 7). It can be found, that perturbed flames can be described with REDIMs of low dimension coupled with a lookup-table that approximates the element compositions. Finally, a summary and outlook are given in Chapter 8.



# Kapitel 1

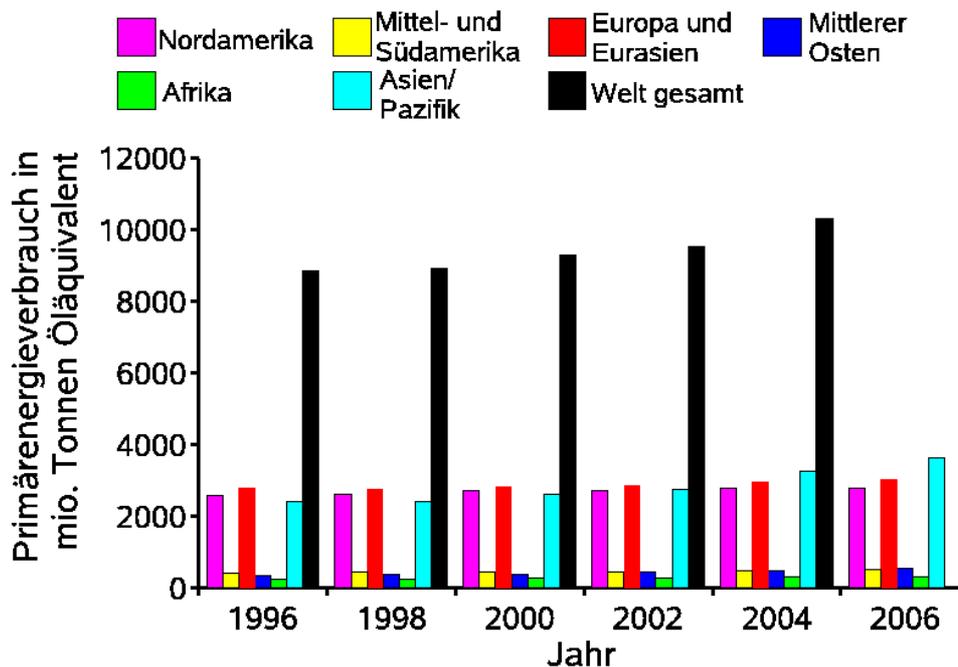
## Einleitung

Seit es Menschen gibt, fasziniert sie das Feuer. Stand am Anfang noch Angst und Schrecken vor dem ungebändigten Element, so wuchs nach und nach die Erkenntnis, mit dem Feuer - bei entsprechend kontrolliertem Einsatz - eine vielfältig nutzbare Hilfe bei der Verbesserung der Lebensverhältnisse zu haben. So kann die gezielte Nutzung der Verbrennung - als Wärmequelle, zur Nahrungszubereitung, zum Schutz vor wilden Tieren usw. - durchaus als eine der herausragendsten Stufen in der Evolution der Menschheit angesehen werden. Bis heute hat sich die Bedeutung der Verbrennung und ihre Stellung als eine der wichtigsten Techniken erhalten: Rund 88% des weltweiten Primärenergieverbrauchs werden durch Verbrennung fossiler Brennstoffe (Kohle, Öl, Erdgas) gedeckt, siehe Abbildung 1.1. Dazu sei erwähnt, dass die International Energy Agency in ihren Prognosen davon ausgeht, dass der Primärenergiebedarf im Jahr 2030 um 55% gegenüber dem Jahr 2005 angewachsen sein wird, entsprechend einem jährlichen Wachstum von 1,8% [65]. Dabei wird auch künftig die Verbrennung fossiler Brennstoffe den weit überwiegenden Anteil des Bedarfs decken [65]. Gerade aufgrund dieser herausragenden Bedeutung der Verbrennung sind in den letzten Jahren mehr und mehr die Probleme dieser die Menschheit seit frühester Zeit begleitenden Technik in den Blickpunkt der Öffentlichkeit gelangt. Zu nennen ist an dieser Stelle der Ausstoß von Verbrennungsprodukten, die sich direkt oder indirekt schädigend auf die Gesundheit des Menschen und seine Umwelt auswirken - so etwa das Treibhausgas Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ), Schadstoffe wie Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ) oder Kohlenmonoxid ( $\text{CO}$ ) und Partikel. Das rasche Wachstum der Erdbevölkerung und die steigenden Ansprüche an den Lebensstandard führen zu einem ständig steigenden Energiebe-



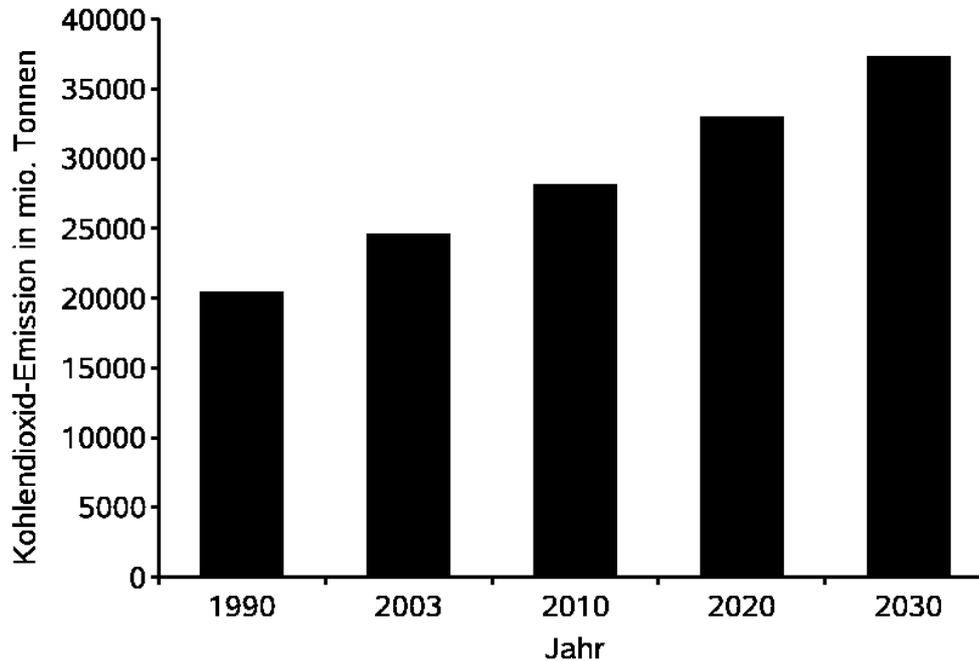
**Abbildung 1.1:** Anteile verschiedener Energieträger, die 2006 zur Deckung des weltweiten Primärenergieverbrauchs eingesetzt wurden, angegeben in Millionen Tonnen Öl-äquivalent; Daten aus [18]. Dabei sind nur Brennstoffe berücksichtigt, für die zuverlässige Daten vorliegen; nicht erfasst sind zum Beispiel Holz und Biomasse.

darf; dies zeigt auch Abbildung 1.2, in der der Primärenergieverbrauch zwischen den Jahren 1966 und 2006 dargestellt ist. Also ist auch mit einem steigenden Ausstoß der genannten, aus der Energieproduktion und dem Energieverbrauch stammenden Problemstoffe zu rechnen. Zur Verdeutlichung dieser Problematik zeigt Abbildung 1.3 exemplarisch den realen und den prognostizierten Anstieg der weltweiten CO<sub>2</sub>-Emissionen zwischen den Jahren 1990 und 2030 [64]. Demnach ist im Jahr 2030 fast mit einer Verdopplung der Emissionen gegenüber 1990 zu rechnen. Um diesen Entwicklungen Einhalt zu gebieten, werden die Emissionen von Verbrennungssystemen mittels zahlreicher nationaler und internationaler Vorschriften geregelt [138]. Die in den Regelungen genannten Grenzwerte für die Emissionen stellen stetig strengere Anforderungen im Hinblick auf die Sauberkeit und Effizienz verbrennungstechnischer Systeme und erfordern intensive Forschung und Verbesserungen, um ihre Einhaltung zu ermöglichen. Ein weiteres Problemfeld, mit dem der Mensch im Hinblick auf die weitere Anwendung der Verbrennung konfrontiert ist, ist die Endlichkeit der schwerpunktmäßig in der heutigen Energieproduktion verwendeten Brennstoffressourcen (Erdöl, Erdgas, Kohle): Dem steigenden Energiebedarf und -verbrauch (siehe oben) stehen abnehmende Ressourcen der nicht nachwachsenden fossilen Brennstoffe gegenüber, eine Diskrepanz, die durch zunehmende Technisierung in Entwicklungsländern wie zum



**Abbildung 1.2:** Primärenergieverbrauch in den Jahren 1996 bis 2006 in Millionen Tonnen Öläquivalent; Daten aus [18].

Beispiel Indien und China verstärkt wird [65]. Sowohl die Umweltproblematik und die aus ihr abgeleiteten, stets strenger werdenden gesetzlichen Grenzwerte, als auch die Endlichkeit der Brennstoffressourcen erfordern eine Optimierung der Verbrennungsprozesse hin zu geringerem Ausstoß schädlicher Stoffe und hin zu erhöhter Effizienz. Derartige Verbesserungen können nur auf Basis eines grundlegenden Verständnisses der Vielzahl chemischer und physikalischer Prozesse, die die Verbrennung beeinflussen (chemische Reaktion, molekularer Transport sowie Strömung), erreicht werden; ebenso muss die Interaktion dieser Prozesse genau bekannt sein. Gewonnen werden diese Erkenntnisse zum einen aus der experimentellen Untersuchung von Verbrennungsprozessen (z. B. mit Hilfe der Laserspektroskopie, siehe [146]), zum anderen mehr und mehr aus numerischen Simulationen. Diese Entwicklung kann anhand der Vorteile der Simulation erklärt werden [146]: Die Untersuchung weiter Parameterbereiche ist im Rahmen von Simulationen sehr viel einfacher und schneller möglich, ebenso können Parameterbereiche erreicht werden, die dem Experiment nicht zugänglich sind (sei es aus sicherheits- oder materialtechnischen Gründen oder weil geeignete Messtechniken fehlen). Simulationen ermöglichen auch einen detaillierteren Einblick in die komplexe Wechsel-



**Abbildung 1.3:** Reale und prognostizierte CO<sub>2</sub>-Emissionen weltweit für die Jahre 1990 bis 2030; Daten aus [64].

wirkung zwischen chemischen und physikalischen Prozessen bei der Verbrennung. Basis numerischer Simulationen von reaktiven Strömungen sind die Navier-Stokes-Gleichungen sowie Erhaltungsgleichungen für thermochemische Zustandsgrößen [146]. In diesen Gleichungen sind mathematische Modelle enthalten, die die Auswirkungen reaktiver, diffusiver und konvektiver Prozesse und deren Interaktion beschreiben. Das resultierende System partieller Differentialgleichungen ergibt nach seiner Lösung (sofern diese möglich ist) einen Vektor der thermochemischen Zustandsgrößen (Druck, Enthalpie und Gemischzusammensetzung), aufgelöst in Raum und Zeit [146]. Die den Gleichungen zugrundeliegenden Modelle zur Beschreibung der chemischen und physikalischen Prozesse im Verbrennungssystem können diverse Schwierigkeiten verursachen, die eine Vereinfachung der Modelle wünschenswert machen. Hier seien beispielhaft die Eigenschaften der chemischen Kinetik genannt: Detaillierte Reaktionsmechanismen für die Niedertemperaturoxidation von Kohlenwasserstoffen enthalten unter Umständen mehrere tausend Elementarreaktionen, in denen oft hunderte von Spezies miteinander reagieren [31]. Für jede einzelne Reaktion muss ein chemischer Quellterm berechnet werden, was aufgrund der starken Nichtlinearität dieser Terme zu einem hohen

---

Rechenzeitaufwand führt. Zudem erfordert jede einzelne Spezies die Lösung einer Teilchenerhaltungsgleichung [146]; damit sind die resultierenden Systeme partieller Differentialgleichungen von hoher Dimension. Weitere Probleme entstehen durch die großen Unterschiede in den Zeit- und Längenskalen: Die Zeitskalen chemischer Reaktionen in Verbrennungsprozessen umfassen mehrere Zehnerpotenzen (siehe Kapitel 3.1) und die aufzulösenden Längenskalen reichen von kleinsten Wirbelstrukturen im Mikro- oder Millimeterbereich [146] bis hin zu den Abmessungen großer Brennkammern, die im Meterbereich liegen können. Folge dieser unterschiedlichen Größenordnungen bei den zu beschreibenden Prozessen ist eine Steifheit des beschreibenden Differentialgleichungssystems [84]. Um ein partielles Differentialgleichungssystem mit den genannten Eigenschaften (hohe Dimension, hohe Steifheit und stark nichtlineare Terme) lösen zu können, müssen rechenzeitintensive implizite Lösungsmethoden angewandt werden; dies kann soweit reichen, dass eine Lösung mit der heute zur Verfügung stehenden Rechnerleistung nicht in vernünftiger Zeit möglich ist (insbesondere bei der dreidimensionalen Simulation turbulenter, reaktiver Strömungen). Um dennoch das wichtige Tool der numerischen Simulation nutzen zu können, werden vereinfachte Modelle zur Beschreibung einzelner Teilprozesse bei der Verbrennung entwickelt. Dabei entsteht ein Zielkonflikt: Eine möglichst umfassende Vereinfachung und damit eine deutliche Reduzierung von Rechenzeit soll bei möglichst geringem Genauigkeitsverlust realisiert werden. Aufgrund der oben erwähnten problematischen Eigenschaften der chemischen Kinetik und dem daraus resultierenden großen Einsparpotential sind Modelle zur Reduzierung der chemischen Reaktionskinetik von besonderem Interesse. Ein Modell zur Reduzierung der chemischen Kinetik ist die Methode der Intrinsischen Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten, kurz ILDM (Intrinsic Low-Dimensional Manifold) [88], [89]. Sie nutzt eine wesentliche Eigenschaft der chemischen Dynamik, die sich nach Beginn der Reaktionen auf Unterräume immer niedrigerer Dimension beschränkt (siehe Kapitel 3.1). Diese Unterräume können mit einer Analyse der Zeitskalen der chemischen Kinetik bestimmt werden. Dabei werden als Eingabe in das Verfahren lediglich der zugrundeliegende detaillierte Mechanismus und die Dimension des niedrigdimensionalen Unterraumes benötigt. Im Gegensatz zu anderen Reduktionsmethoden (siehe den Überblick im Kapitel 2) handelt es sich damit um ein Verfahren, das beim Anwender keinen großen Erfahrungsschatz voraussetzt und das automatisiert ablaufen kann. Die Methode wurde in den letzten Jahren stetig weiterentwickelt (für Referenzen siehe Kapitel 3) und sowohl in Bezug auf die zugrundeliegenden mathematischen Modelle

als auch die numerische Berechnung kontinuierlich verbessert. Dennoch verbleiben offene Fragestellungen und Entwicklungspotentiale, die im Kapitel 3 nach einer genauen Diskussion der Methode selbst angesprochen und für die in den folgenden Kapiteln Lösungsvorschläge vorgestellt werden. So ist der Einfluß von Ungenauigkeiten des detaillierten Mechanismus auf die ILDMs zu nennen, der bisher nicht untersucht wurde. Mittels einer Sensitivitätsanalyse von ILDMs im Hinblick auf kinetische Daten, wie sie im Kapitel 4 vorgestellt wird, können die Auswirkungen von Ungenauigkeiten des detaillierten Mechanismus quantifiziert werden [71]. Ein weiteres Problem im Kontext von ILDMs ist die Behandlung des Bereichs langsamer Chemie - ein Bereich, in dem aufgrund der nur geringen Separation der Zeitskalen entweder keine oder nur eine sehr hochdimensionale ILDM gefunden werden kann. Um für Flammenrechnungen dennoch niedrigdimensionale ILDM-Tabellen inklusive dieses Bereichs langsamer Chemie zur Verfügung stellen zu können, werden alternative Konzepte benötigt. In Kapitel 5 wird ein solches Konzept, die hierarchisch erweiterten ILDMs, diskutiert. Es basiert auf der hierarchischen Struktur von ILDMs (siehe [96], [99]) und verwendet zusätzliche Bedingungen, die eine niedrigdimensionale Tabellierung ermöglichen [72]. Weiteres Entwicklungspotential ergibt sich bei der Implementierung von ILDM-Tabellen in Programme zur Berechnung reaktiver Strömungen (hier speziell in Flammenrechnungen), da die bisher realisierte Implementierung vorab generierter Tabellen als reine Lookup-Bibliotheken diverse Nachteile aufweist. Es wurde ein neuer Algorithmus zur on-demand Generierung von ILDMs entwickelt [72]; er wird im Kapitel 6 vorgestellt und ermöglicht eine deutliche Einsparung von Rechenzeit und Speicherplatz, die Verwendung von ILDM-Tabellen mit unterschiedlicher Dimension sowie eine Fehlerabschätzung. Schließlich wird noch ein Flammentyp untersucht, auf den die ILDM-Methode bisher nicht angewandt wurde: Vorgemischte Gegenstromflammen, die periodischen Störungen der Gemischzusammensetzung beziehungsweise des Strömungsfeldes unterworfen sind [70], [73]. Im Kapitel 7 wird dazu zunächst die Ausbreitung der Störung selbst untersucht, bevor weitere Analysen, darunter eine Zeitskalenanalyse im Rahmen von ILDM, einen genauen Einblick in die chemische Kinetik gestörter Flammen geben. Zudem wird ein neues Konzept der Zeitskalenanalyse im Rahmen der REDIM-Methode (Reaction-Diffusion Manifolds, [27], [29], [30]) vorgestellt.

# Kapitel 2

## Verfahren zur Reduktion von Reaktionsmechanismen

Die Notwendigkeit der Verwendung reduzierter Reaktionsmechanismen bei Simulationen komplexer Verbrennungssysteme wurde bereits in Kapitel 1 angesprochen. Zahlreiche Methoden wurden zum Zweck der Identifizierung solcher reduzierter Mechanismen entwickelt [57], [114], [130], [134]. Gemeinsam ist allen diesen Methoden das Ziel, einen möglichst großen Grad an Reduktion bei gleichzeitig hoher Qualität des reduzierten Mechanismus zu erreichen; dies sollte mit einem möglichst geringen Input des Anwenders verbunden sein. Neben der Zielsetzung ist den Methoden auch gemeinsam, dass sie die Eigenschaft der chemischen Dynamik, nach kurzer Zeit auf niedrigdimensionale Unterräume zu relaxieren (siehe Kapitel 3.1), ausnutzen. Unterschiede liegen in der Art und Weise, wie dies geschieht. Zum einen gibt es Methoden, die chemische und physikalische Annahmen (wie zum Beispiel Quasistationarität oder partielle Gleichgewichte) ausnutzen, zum anderen werden mathematische Algorithmen (wie zum Beispiel die Eigenvektoranalyse) eingesetzt. Je nachdem ergeben sich Verfahren, die mehr oder weniger von der Erfahrung des Anwenders abhängen, mehr oder weniger zeitintensiv sind und sich in der Qualität des reduzierten Mechanismus und der Anwendbarkeit auf komplexe Systeme unterscheiden. Die resultierenden niedrigdimensionalen Unterräume oder Mannigfaltigkeiten weisen zudem hinsichtlich mathematischer Kriterien unterschiedliche Eigenschaften auf. Unter diesen Eigenschaften seien die Existenz und Eindeutigkeit der Mannigfaltigkeit, ihr glatter und kontinuierlicher Verlauf, die lokale Bestimmbarkeit und die Invarianz genannt [115].

Beispielhaft werden hier einige Verfahren kurz vorgestellt, um eine Einordnung der in dieser Arbeit eingesetzten ILDM-Methode zu ermöglichen. Für eine ausführliche Diskussion der ILDM-Methode selbst wird auf Kapitel 3 verwiesen; die anderen Methoden (sowohl die hier diskutierten als auch weitere, hier nicht erwähnte) werden in [57], [114], [130], [134] und den dort genannten Referenzen detailliert behandelt.

Eine in der Verbrennung häufig - nicht nur zu Reduktionszwecken - eingesetzte Methode ist die Sensitivitätsanalyse [146]. Sie dient dazu, besonders empfindliche Reaktionen und Spezies zu identifizieren [57], [146]. In das System wird eine kleine Störung eingebracht und es werden die lokalen Auswirkungen auf das System untersucht. Als eine Störung kann zum Beispiel eine Änderung kinetischer Daten angesehen werden (siehe die in dieser Arbeit vorgestellte Analyse der ILDM-Sensitivität in Kapitel 4, [71]); eine Auswirkung wäre die Änderung von Geschwindigkeitskoeffizienten oder Spezieskonzentrationen. Anhand der Sensitivitätskoeffizienten von Reaktionen und Spezies können „unwichtige“ Komponenten identifiziert und anschließend im Rahmen einer Mechanismusreduktion vom System entkoppelt werden (siehe zum Beispiel in [57], [136], [151]). Die mit dieser Methode erreichte Reduktion ist zwar nennenswert, jedoch nicht ausreichend. Zudem muss die Analyse bei ausreichend vielen Systemzuständen durchgeführt werden, wenn ein verlässliches Ergebnis für einen großen Zustandsbereich erzielt werden soll. Die dann erhaltene Datenmenge ist entsprechend unüberschaubar. Mit Hilfe weiterer Analysen, zum Beispiel einer sogenannten principal component analysis (Eigenwert- und Eigenvektoranalyse der Matrix der Sensitivitätskoeffizienten), können und müssen die Daten der Sensitivitätsanalyse weiter komprimiert werden (Details dazu in [57]).

Eine weitere Reduktionsmöglichkeit ist durch die Annahme von Quasistationaritäten für Spezies (Quasi Stationary-State Assumption = QSSA) gegeben [107]. Dabei wird verwendet, dass eine Spezies als quasistationär angesehen werden kann (im Vergleich zu anderen reaktiven Spezies), wenn die Geschwindigkeit ihrer Bildungsreaktion ungefähr gleich ist wie die Geschwindigkeit ihrer Verbrauchsreaktion [146]. Solche Spezies können durch algebraische Gleichungen beschrieben werden, womit sich die Dimension des Differentialgleichungssystems zur Beschreibung der Spezieserhaltung entsprechend reduziert. Weitere Vereinfachungen ergeben sich durch die Annahme partieller Gleichgewichte für Reaktionen (Partial Equilibrium = PE); dabei haben Hin- und Rückreaktion die gleiche Geschwindigkeit [146]. PE führt bei Verbrennungsprozessen zu höheren Ungenauigkeiten

---

als QSSA [146]. Bei den beiden Verfahren kann während der Reduktion keine automatische Kontrolle einer vorher definierten Genauigkeit erfolgen; die resultierenden niedrigdimensionalen Unterräume sind nicht invariant. Positiv ist, dass die Methode lokal ist; das heißt, es kann ein Punkt im reduzierten Zustandsraum bestimmt werden, ohne dass der gesamte reduzierte Zustandsraum (die niedrigdimensionale Mannigfaltigkeit) berechnet werden muss. Nachteilig ist die beim Anwender nötige große Erfahrung. Beispiele für die Anwendung von QSSA finden sich in [9], [15], [60], [107], [108], [109].

Ebenfalls nicht invariant und lokal ist das Lumping [61], [112], [134], bei dem mehrere Spezies zu einer neuen Pseudospezies zusammengefasst werden und so die Speziesanzahl reduziert wird. Besonders interessant ist dieser Ansatz in Bereichen, in denen eine Entkopplung schneller Zeitskalen (wie bei der ILDM-Methode, siehe Kapitel 1, 3) nicht den gewünschten Erfolg bringt; dies gilt insbesondere für Spezies mittlerer Zeitskalen. Die Herausforderungen der Methode liegen darin, die zusammenfassenden Spezies zu identifizieren, die Beiträge der einzelnen zusammengefassten Spezies zur Pseudospezies festzulegen und schließlich die kinetischen Daten der resultierenden Pseudospezies zu bestimmen. Dabei werden zwei Ansätze verfolgt: Der mathematische Ansatz, der weniger Erfahrung seitens des Anwenders im Hinblick auf die chemischen Eigenschaften einzelner Spezies erfordert, und der Ansatz über chemische Strukturen und Eigenschaften von Spezies, der eine große Erfahrung voraussetzt.

Computational Singular Perturbation [56], [59], [75], [76], [81], [139] beruht auf der singulären Störungstheorie. Wie bei der ILDM-Methode wird zur Analyse die Jacobimatrix der chemischen Quellterme eingesetzt und eine lokale Eigenwert-/Eigenvektor-Analyse durchgeführt. Diese Analyse erfolgt während der Berechnung der reduzierten Gleichungen [127] und macht das Verfahren sehr rechenzeitintensiv, jedoch auch sehr genau, da die schnellen Moden zeitaufgelöst identifiziert werden. Aus der Zeitskalenanalyse wird ein Index abgeleitet, der angibt, welche Reaktionen für einzelne Spezies wichtig und weniger wichtig sind; dies kann zur Reduzierung der Zahl der Reaktionen eingesetzt werden. Eine Reduzierung der Spezieszahl und damit der abhängigen Variablen erfolgt jedoch nicht; dazu müssen zusätzliche Annahmen, wie etwa Quasistationarität, getroffen werden. In der Praxis wird häufig auf den Vorteil der nicht-konstanten Jacobimatrix verzichtet, um eine Reduzierung der Rechenzeit zu erreichen [82]. Zudem gibt es Bemühungen, die Methode in Verbindung mit effizienten Tabellierungsstrategien zu implementieren [77]. Die Methode ist lokal, einzelne reduzierte Punkte können

ohne Bestimmung der ganzen Mannigfaltigkeit berechnet werden.

Die RCCE-Methode (Rate-Controlled Constrained Equilibrium) [66], [67], [69] geht von zwei unterschiedlichen Arten chemischer Spezies aus. Zum einen gibt es kinetisch kontrollierte Spezies, deren Dynamik mittels detaillierter Chemie berechnet wird. Zum anderen gibt es Spezies im Gleichgewicht (vergleichbar den quasistationären Spezies bei der QSSA, siehe oben). Die Entwicklung dieser Gleichgewichts-Spezies ergibt sich aus thermodynamischen Überlegungen, nämlich aus der Minimierung der freien Gibbs-Energie der Mischung [66], [69]. Dieser Vorgang geschieht jedoch unter der festen Vorgabe der Konzentrationen der kinetisch kontrollierten Spezies, die sich aus der detaillierten Chemie ergeben. Welche Spezies als kinetisch kontrolliert und welche als Gleichgewichts-Spezies angenommen werden, wird als Eingabe benötigt; zu ihrer Bestimmung können verschiedene Verfahren eingesetzt werden, zum Beispiel CSP oder ILDM [67]. Im Gegensatz zu diesen Methoden ist es mit RCCE nicht möglich, schnelle und langsame Zeitskalen zu identifizieren [67]. Aus der RCCE resultierende Mannigfaltigkeiten sind nicht invariant, ihre Punkte können lokal bestimmt werden.

Zu den globalen Methoden (Bestimmung der ganzen Mannigfaltigkeit notwendig) gehört die TGLDM (Trajectory Generated Low-Dimensional Manifold) [90], [110]. Die TGLDMs bestehen aus Reaktionstrajektorien. Eine 1d-TGLDM besteht aus einer einzigen Reaktionstrajektorie, ausgehend von einem gegebenen Ausgangszustand; eine 2d-TGLDM besteht aus Reaktionstrajektorien, die von den Punkten einer zu definierenden Kurve im Zustandsraum ausgehen. Der Aufbau der Mannigfaltigkeiten aus Reaktionstrajektorien macht ihre Berechnung einfach, die resultierenden TGLDMs sind invariant. Zudem bietet die TGLDM den Vorteil einer günstigen Parametrisierung [90].

Ebenfalls global ist FGM (Flamelet Generated Manifolds) [2], [44], [141], [142], [143], [144]. Die Mannigfaltigkeiten werden hier aus eindimensionalen Flamelets aufgebaut. Dies basiert auf der Flamelet-Theorie [146], wonach mehrdimensionale Flammen als Ensemble eindimensionaler Flammen verstanden werden können. Eine solche Mannigfaltigkeit umfasst den ganzen Bereich der Zustände, die in den berechneten Flamelets auftreten, ist allerdings nicht invariant.

Von den hier bisher nicht erwähnten Methoden seien noch kurz genannt: Flame prolongation of ILDM [51]; ICE-PIC (Invariant Constrained Equilibrium Edge Pre-Curve) [113], [115], [116]; der Roussel- und Fraser-Algorithmus [119], [120], [121]; die Methode der Invarianten und Integralen Mannigfaltigkeiten [16], [48], [53], [55]; approximate slow invariant manifolds und slow invariant manifolds

[127], [128]; pre-image curves [113], [115] und GQL (Global Quasi-Linearization) [25].



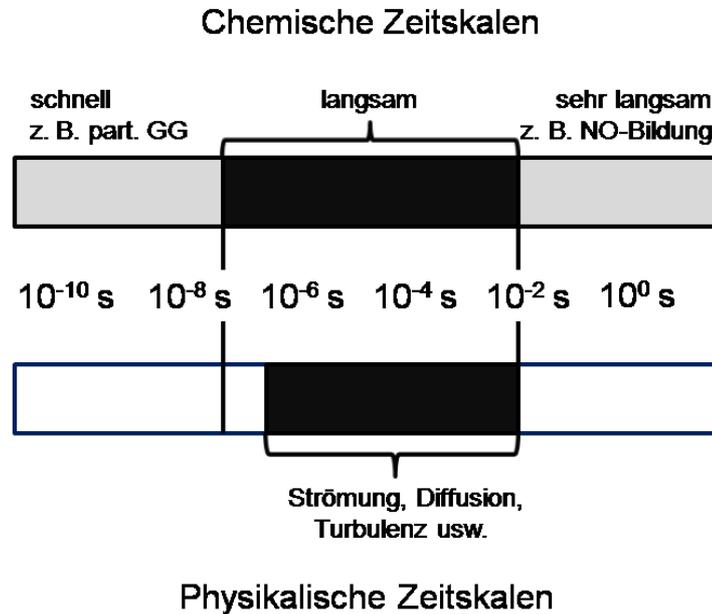
# Kapitel 3

## Intrinsische Niedrigdimensionale Mannigfaltigkeiten

Nach der zusammenfassenden Darstellung gängiger Reduktionsmethoden in Kapitel 2 wird nun auf die in dieser Arbeit eingesetzte ILDM-Methode [84], [88], [89] detailliert eingegangen.

### 3.1 Dynamik reaktiver Strömungen und Grundidee der ILDM-Methode

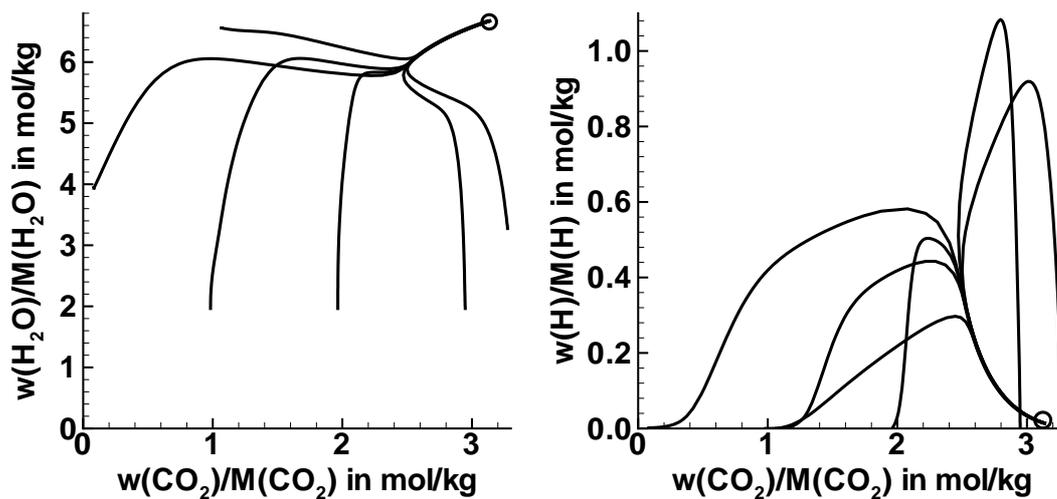
Reaktive Strömungen wie Verbrennungsprozesse sind von einer komplexen Wechselwirkung chemischer und physikalischer Prozesse gekennzeichnet. Entscheidend für diese Wechselwirkung sind dabei die Zeitskalen, mit denen die Einzelprozesse ablaufen. Abbildung 3.1 zeigt, dass die Chemie einen weiten Zeitskalenbereich zwischen ca.  $10^{-9}$  und  $10^2$  s umfasst; als schnelle Prozesse sind zum Beispiel die Einstellung eines partiellen Gleichgewichts oder eines quasistationären Zustandes zu nennen, als langsamer Prozess die NO-Bildung [146]. Bei den physikalischen Vorgängen wie Strömung und Transport liegt eine andere Situation vor: Die Zeitskalen sind auf einen sehr viel kleineren Bereich zwischen ca.  $10^{-6}$  und  $10^{-2}$  s beschränkt. Das Verhalten eines Reaktionssystems wird von diesen unterschiedlichen Zeitskalen der Chemie und Physik wesentlich bestimmt. Diejenigen chemischen Prozesse, die kleinere Zeitskalen wie die Physik aufweisen,



**Abbildung 3.1:** Zeitskalen chemischer und physikalischer Prozesse bei Verbrennungsvorgängen.

bleiben von den physikalischen Prozessen unbeeinflusst oder in anderen Worten: Schnelle chemische Prozesse führen zu einer sofortigen Relaxation einer physikalischen Störung. Chemische Prozesse, die wesentlich langsamer sind als die langsamsten physikalischen Prozesse, bleiben ebenfalls unbeeinflusst. Lediglich die chemischen und physikalischen Prozesse, die sich im gleichen Zeitskalenbereich befinden, können miteinander koppeln und bestimmen damit die Wechselwirkung zwischen Chemie und Physik im Reaktionssystem. Dies kann für die Reduzierung chemischer Reaktionsmechanismen ausgenutzt werden, indem nur die mit den physikalischen Prozessen koppelnden chemischen Prozesse berücksichtigt werden, während die schnellen chemischen Prozesse vom System abgetrennt werden. Wie dies geschehen kann, wird deutlich, wenn man die zeitliche Entwicklung eines reaktiven Systems betrachtet. Abbildung 3.2 zeigt als Beispiel die Dynamik des stöchiometrischen Methan/Luft-Systems (Druck 1 bar, Temperatur im Unverbrannten 298 K), berechnet in einem räumlich homogenen, isobaren Reaktor mit detaillierter Chemie. Die Betrachtung eines solchen homogenen Reaktors ermöglicht es, die chemische Dynamik unabhängig von physikalischen Prozessen (Strömung und Transport) zu analysieren, da aufgrund des Fehlens von Gradienten der Stoff- und Systemeigenschaften keine Strömungs- oder Transportprozesse auftreten [146]. In der Abbildung dargestellt sind Trajektorien des Systems

für unterschiedliche Anfangsbedingungen sowie der Gleichgewichtswert in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Jede Trajektorie spiegelt den Verlauf der chemischen Reaktion im Zustandsraum wider: Die chemische Reaktion bewegt sich vom Ausgangszustand entlang der Trajektorie hin zum chemischen Gleichgewicht (eingetragen als Kreis)<sup>1</sup>. Während der Entwicklung hin zum chemischen Gleichgewicht bewegen sich die Trajektorien aufeinander zu und relaxieren dabei auf niedrigdimensionale Unterräume (siehe [84] für eine vergleichbare Betrachtung des Synthesegas/Luft-Systems), innerhalb denen sich alle Trajektorien unabhängig vom Anfangszustand bewegen. Sichtbar wird das in der Abbildung in der Bündelung der Trajektorien zu einer Linie, einem eindimensionalen Unterraum. Das letztlich (theoretisch nach unendlicher Zeit) von allen Trajektorien erreichte chemische Gleichgewicht stellt als Punkt im Zustandsraum einen nulldimensionalen Unterraum des Zustandsraumes dar. Die Relaxation der Dy-



**Abbildung 3.2:** Trajektorien des stöchiometrischen Methan/Luft-Systems, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Ebenfalls eingetragen ist das chemische Gleichgewicht (Kreis). Druck 1 bar, Temperatur im Unverbrannten 298 K.

namik auf niedrigdimensionale Unterräume wird durch die schnellen chemischen Prozesse bestimmt, die Bewegung innerhalb der Unterräume durch die verbleibenden, langsamen chemischen Prozesse. Dieses Verhalten der chemischen Dy-

<sup>1</sup>Das chemische Gleichgewicht ist ausschließlich eine Funktion von Druck, Enthalpie und Elementzusammensetzung [84]; diese Größen wurden bei der Berechnung der Trajektorien konstant gehalten. Voraussetzung für die Trajektorienberechnung ist, dass der Ausgangszustand innerhalb der Zündgrenzen liegt.

namik kann für die Mechanismusreduktion ausgenutzt werden. Ist zum Beispiel nur der erreichte Endzustand eines Systems von Interesse, nicht jedoch die Dynamik hin zu diesem Endzustand, so kann das System allein durch das chemische Gleichgewicht beschrieben werden. Dies entspricht der weithin bekannten Annahme „gemischt gleich verbrannt“ [58] beziehungsweise einer nulldimensionalen Beschreibung: Enthalpie, Druck und Elementzusammensetzung beschreiben den Systemzustand, es wird keine Variable zur Beschreibung des Reaktionsfortschritts benötigt. Interessiert man sich auch für die Dynamik des Systems kurz vor Erreichen des Gleichgewichts, wird eine eindimensionale Beschreibung gewählt; die genannten Größen Enthalpie, Druck und Elementzusammensetzung werden um eine Variable zur Beschreibung des Reaktionsfortschritts ergänzt. Mit einer weiteren Erhöhung der Anzahl der Reaktionsfortschrittsvariablen kann entsprechend die Dynamik des Reaktionssystems in immer größeren Entfernungen zum chemischen Gleichgewicht beschrieben werden.

Will man nun das beschriebene Verhalten der chemischen Dynamik zur Mechanismusreduktion verwenden, so bedarf es einer Methode, die diejenigen niedrigdimensionalen Unterräume identifiziert, auf die sich die Dynamik mit zunehmender Nähe zum chemischen Gleichgewicht beschränkt. Diverse Methoden wurden dazu vorgeschlagen (siehe Kapitel 2 und [130], [134]). Viele dieser Methoden weisen den Nachteil auf, dass sie vom Anwender ein nicht unerhebliches Vorwissen über das zu reduzierende System erfordern. Eine Methode, die lediglich den detaillierten Mechanismus und den gewünschten Grad der Reduzierung (beziehungsweise die Dimension des niedrigdimensionalen Unterraumes) als Eingabe erfordert, ist die von Maas und Pope entwickelte Methode der Intrinsischen Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten, kurz ILDM (Intrinsic Low-Dimensional Manifold) [84], [88], [89]. Diese Methode wurde stetig weiterentwickelt<sup>2</sup> und stellt ein stabiles Tool zur Mechanismusreduzierung dar. Grundlage der ILDM-Methode ist eine Eigenvektoranalyse der Jacobimatrix der chemischen Quellterme des detaillierten Mechanismus. Eine darauf folgende spektrale Zerlegung der Eigenvektoren in einen langsamen und in einen schnellen Eigenvektorraum bildet die Basis für eine Entkopplung der schnellen Prozesse (die Anzahl der zu entkoppelnden Prozesse ist neben dem detaillierten Mechanismus die einzige Eingabe in das Verfahren). Die ILDM ist dann die Menge von Punkten, für die alle schnell-

---

<sup>2</sup>Siehe zum Beispiel [4], [11], [12], [13], [14], [17], [24], [28], [36], [37], [42], [71], [72], [86], [87], [91], [97], [98], [99], [100], [150].

len (entkoppelten) Prozesse im Gleichgewicht (relaxiert) sind. Die Dynamik auf der ILDM wird durch die langsamen Prozesse bestimmt. Diese Bewegung auf der ILDM ist vollständig beschrieben, wenn Druck, Enthalpie und Elementzusammensetzung bekannt sind, sowie eine Anzahl  $n_s$  ( $n_s$ : Anzahl langsamer Prozesse) an Reaktionsfortschrittsvariablen, die die Mannigfaltigkeit parametrisieren. Die ILDM-Methode liegt dieser Arbeit zugrunde und wird im Folgenden detailliert vorgestellt.

## 3.2 Mathematisches Modell

### 3.2.1 ILDM-Gleichungen

Ausgangspunkt der Betrachtung ist ein chemisch reagierendes System ohne den Einfluss physikalischer Prozesse mit einer Anzahl von  $n_{spec}$  chemischen Spezies. Die Dynamik dieses Systems wird beschrieben durch ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen [84]:

$$\frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial t} = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}). \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet  $\boldsymbol{\psi} = (h, p, \phi_1, \phi_2, \dots, \phi_{n_{spec}})^T$  den  $n = (n_{spec} + 2)$ -dimensionalen Zustandsvektor, bestehend aus Enthalpie  $h$ , Druck  $p$  und den  $n_{spec}$  spezifischen Molzahlen  $\phi_i = w_i/M_i$  der einzelnen Spezies (mit  $w_i$  als dem Massenbruch und  $M_i$  als der molaren Masse der jeweiligen Spezies).  $\mathbf{F}(\boldsymbol{\psi})$  ist die vektorwertige Funktion der chemischen Quellterme [84]. Anhand der Jacobimatrix  $\mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}) = \frac{\partial \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi})}{\partial \boldsymbol{\psi}}$  erhält man Informationen über die Zeitskalen der chemischen Dynamik, die den inversen Beträgen der  $n$  Eigenwerte der Jacobimatrix entsprechen. Eigenwerte mit kleinen negativen oder positiven Beträgen gehören zu langsamen Prozessen; dem Betrag nach große negative Eigenwerte entsprechen schnellen Relaxationsprozessen [84]. Bei adiabaten, isobaren und homogenen Reaktionssystemen treten darüber hinaus  $(n_e + 2)$  Eigenwerte mit dem Betrag 0 auf; diese sind den Erhaltungsprozessen zuzuordnen (Elementmassen von  $n_e$  Elementen sowie Druck und Enthalpie). Die zu den  $n$  Eigenwerten gehörenden  $n$  Eigenvektoren geben die Richtung der chemischen Dynamik an. Außerdem bilden sie aufgrund ihrer linearen Unabhängigkeit eine Basis des Zustandsraumes. Eine Darstellung der Jacobimatrix in dieser neuen Basis, verbunden mit einer Sortierung der Eigenvektoren entsprechend dem ansteigenden Betrag der zugehörigen Eigenwerte,

ermöglicht eine Zerlegung der Jacobimatrix in einen langsamen und einen schnellen Unterraum (für Methoden zur Zerlegung von Matrizen in einen schnellen und langsamen Unterraum siehe [54], [84] und [86]):

$$\mathbf{F}_\psi(\psi) = \begin{pmatrix} \mathbf{Z}_s(\psi) & \mathbf{Z}_f(\psi) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{N}_s(\psi) & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{N}_f(\psi) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{Z}}_s(\psi) \\ \tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi) \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

wobei der Zusammenhang

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{Z}}_s(\psi) \\ \tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{Z}_s(\psi) & \mathbf{Z}_f(\psi) \end{pmatrix}^{-1} \quad (3.3)$$

gilt. Die  $(n \times n_s)$ -dimensionale Matrix  $\mathbf{Z}_s(\psi)$  bezeichnet den langsamen, rechten invarianten Eigenvektorraum (Index  $s$  für slow); er wird von den Eigenvektoren aufgespannt, die zu den  $n_s$  Eigenwerten mit den größten Realteilen gehören. Der entsprechende langsame, linke invariante Eigenvektorraum wird durch die Matrix  $\tilde{\mathbf{Z}}_s(\psi)$  aufgespannt. Von  $n_f$  Eigenvektoren, zugehörig zu den Eigenwerten mit den kleinsten Realteilen, wird der schnelle, rechte invariante Unterraum  $\mathbf{Z}_f(\psi)$  (Index  $f$  für fast) aufgespannt;  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi)$  bezeichnet den schnellen, linken invarianten Eigenvektorraum. In den Matrizen  $\mathbf{N}_s(\psi)$  (Dimension  $(n_s \times n_s)$ ) und  $\mathbf{N}_f(\psi)$  (Dimension  $(n_f \times n_f)$ ) sind die  $n_s$  langsamen bzw. die  $n_f$  schnellen Eigenwerte des Systems enthalten<sup>3</sup>. An dieser Stelle sei erwähnt, dass die Berechnung der invarianten Unterräume von  $\mathbf{F}_\psi(\psi)$  einer der rechenzeitintensivsten Schritte bei der ILDM-Berechnung ist [86].

Im Allgemeinen beschreibt Gleichung (3.1) die Dynamik nichtlinearer Systeme. Führt man nun eine Linearisierung um einen Punkt  $\psi^0$  ein und vernachlässigt außerdem Glieder zweiter und höherer Ordnung, so ergibt sich als Näherung erster Ordnung (entsprechend einer Entwicklung in eine Taylorreihe):

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} \approx \mathbf{F}(\psi^0) + \mathbf{F}_\psi(\psi^0) \cdot (\psi - \psi^0). \quad (3.4)$$

Unter Berücksichtigung der Zerlegung der Jacobimatrix, gegeben durch Gleichung (3.2), ergibt sich daraus

$$\tilde{\mathbf{Z}}(\psi) \frac{\partial \psi}{\partial t} \approx \tilde{\mathbf{Z}}(\psi) \cdot \mathbf{F}(\psi^0) + \mathbf{N}(\psi) \cdot \tilde{\mathbf{Z}}(\psi) \cdot (\psi - \psi^0). \quad (3.5)$$

Mit  $\tilde{\mathbf{Z}} = (\tilde{z}_1, \dots, \tilde{z}_n)^T$  kann aus Gleichung (3.5) die Bedingung für die Quasistationarität eines chemischen Prozesses mit der Zeitskala  $\lambda_i$  abgeleitet werden; sie

<sup>3</sup>Entartete Eigenwerte sind mehrfach in der Matrix enthalten [86].

lautet:

$$0 = \tilde{z}_i \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}^0) + \lambda_i \tilde{z}_i (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}^0). \quad (3.6)$$

Mit  $\boldsymbol{\psi}(t=0) = \boldsymbol{\psi}^0$  ist Gleichung (3.6) erfüllt, wenn

$$\tilde{z}_i \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}^0) = 0 \quad (3.7)$$

gültig ist. Aus der Formulierung von Gleichung (3.7) in Matrixschreibweise resultiert das  $n_f$ -dimensionale Gleichungssystem mit  $n$  Unbekannten

$$\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0}, \quad (3.8)$$

das eine niedrigdimensionale Mannigfaltigkeit oder - anders formuliert - einen niedrigdimensionalen Unterraum des  $n$ -dimensionalen Zustandsraumes definiert. Die Zustände in diesem Unterraum sind dadurch charakterisiert, dass die Reaktionskomponenten in Richtung der schnellen Eigenvektoren verschwinden.

Vor der Berechnung von Mannigfaltigkeiten basierend auf dem Gleichungssystem (3.8) muss geklärt werden, wie die Parametrisierung der Mannigfaltigkeit vorgenommen wird, wie das Lösungsverfahren aussieht und welche Zustände das System tatsächlich einnehmen kann. Diese Punkte werden nun angesprochen.

### 3.2.2 Parametrisierung der ILDM

Zur Schließung des mit  $n_f$  Gleichungen bei  $n$  Unbekannten nicht lösbaren Gleichungssystems (3.8) müssen  $n_c = (n - n_f) = (n_s + 2)$  sogenannte Parametrisierungsgleichungen gefunden werden. Wichtig ist dabei, dass diese Parametrisierungsgleichungen eine eindeutige Lösung von Gleichung (3.8) ermöglichen müssen. Zudem lassen sich die Gleichungen zur Parametrisierung in zwei Teile aufgliedern: In  $n_z = (n_e + 2)$  Gleichungen zur Parametrisierung der Erhaltungsgrößen (Enthalpie, Druck sowie Elementzusammensetzung),  $\tilde{\mathbf{P}}_z(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0}$ , sowie in  $m = (n_c - n_z)$  Gleichungen zur Parametrisierung der Reaktionsfortschrittsvariablen,  $\tilde{\mathbf{P}}_m(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0}$  [86]. Innerhalb der Parametrisierung  $\tilde{\mathbf{P}}_z$  der Erhaltungsgrößen müssen ebenfalls zwei Teile unterschieden werden: Ohne physikalische Prozesse, also bei ausschließlich chemischer Reaktion, können sich Erhaltungsgrößen nicht zeitlich verändern (Beispiel: homogene und geschlossene Reaktionssysteme); treten physikalische Prozesse auf (Beispiel: molekularer Transport in allgemeinen

Reaktionssystemen), kommt es zu einer zeitlichen Veränderung der Erhaltungsgrößen. Dieser Unterschied wird bei der Parametrisierung  $\tilde{\mathbf{P}}_z$  berücksichtigt [86]:

$$\begin{aligned}\mathbf{P}_z^1 \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) &= \mathbf{0} \\ \mathbf{P}_z^2 \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) &= \boldsymbol{\alpha}.\end{aligned}\quad (3.9)$$

Dabei sind  $\mathbf{P}_z^1$  und  $\mathbf{P}_z^2$  Parametrisierungsmatrizen der Dimension  $((n_z - n_\chi) \times n)$  beziehungsweise  $(n_\chi \times n)$ ;  $\boldsymbol{\psi}_p$  ist der  $n$ -dimensionale Zustandsvektor eines bereits vorhandenen Punktes auf der ILDM,  $\boldsymbol{\psi}$  der  $n$ -dimensionale Zustandsvektor eines Punktes in der Umgebung von  $\boldsymbol{\psi}_p$ .  $\boldsymbol{\alpha} = (\alpha_1, \dots, \alpha_{n_\chi})^T$  ist ein  $n_\chi$ -dimensionaler Vektor. Die erste Gleichung von (3.9) gibt die Parametrisierung für die Erhaltungsgrößen an, die sich nicht verändern; die zweite Gleichung parametrisiert die erlaubte Änderung der übrigen, nicht konstanten Erhaltungsgrößen. Die Parametrisierung der Reaktionsfortschrittsvariablen gleicht in ihrer Form dieser Parametrisierung der sich zeitlich ändernden Erhaltungsgrößen und ist gegeben durch [86]:

$$\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) = \boldsymbol{\theta}, \quad (3.10)$$

mit  $\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi})$  als einer  $(m \times n)$ -dimensionalen Parametrisierungsmatrix und  $\boldsymbol{\theta} = (\theta_1, \dots, \theta_m)^T$  als einem  $m$ -dimensionalen Vektor der Parameter der Reaktionsfortschrittsvariablen. Im Gegensatz zu den Parametrisierungsmatrizen  $\mathbf{P}_z^1$  und  $\mathbf{P}_z^2$ , die während der ILDM-Berechnung konstant bleiben [86], wird  $\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi})$  kontinuierlich während der ILDM-Berechnung an den Reaktionsfortschritt angepasst (siehe Kapitel 3.3).

Aus der Zusammenfassung der ILDM-Bestimmungsgleichungen (3.8) und den Parametrisierungsgleichungen (3.9) und (3.10) ergibt sich das bei der ILDM-Berechnung zu lösende,  $n$ -dimensionale Gleichungssystem:

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) &= \mathbf{0} \\ \mathbf{P}_z^1 \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) &= \mathbf{0} \\ \mathbf{P}_z^2 \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) &= \boldsymbol{\alpha} \\ \mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p) &= \boldsymbol{\theta}.\end{aligned}\quad (3.11)$$

Die numerische Lösung dieses Systems wird im nächsten Kapitel 3.3 diskutiert, hier sei jedoch noch kurz auf einen Aspekt eingegangen, der bei der Parametrisierung zu beachten ist. So muss zu Beginn der ILDM-Berechnung eine Anfangsparametrisierung für den Reaktionsfortschritt gewählt werden; dieser Wahl kommt

entscheidende Bedeutung im Hinblick auf die Stabilität des numerischen Verfahrens zu. Eine gute Anfangsparametrisierung kann erhalten werden, wenn die  $m$  Vektoren der Parametrisierungsmatrix  $\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi})$  orthogonal sind zu den  $n_f$  "schnellen" linken Eigenvektoren der Matrix  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi})$  und den insgesamt  $n_z$  Vektoren der Matrizen  $\mathbf{P}_z^1(\boldsymbol{\psi})$  und  $\mathbf{P}_z^2(\boldsymbol{\psi})$ , wenn also gilt:

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \\ \mathbf{P}_z^1 \\ \mathbf{P}_z^2 \end{pmatrix} \cdot \mathbf{P}_m^T(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0}. \quad (3.12)$$

$\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi})$  entspricht damit dem orthogonalen Komplement der Matrix  $(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \ \mathbf{P}_z^1 \ \mathbf{P}_z^2)^T$ .

### 3.3 Numerisches Verfahren

Nur in den seltensten Fällen ist das Gleichungssystem (3.11) analytisch lösbar (für Beispiele: [84]). Zur Lösung von (3.11) wird daher auf numerische Methoden, genauer auf ein mehrdimensionales Fortsetzungsverfahren, zurückgegriffen. Dazu kann das Gleichungssystem unter Verwendung eines Fortsetzungsparameters  $\zeta$  wie folgt angegeben werden [86]:

$$\tilde{\mathbf{P}}(\boldsymbol{\psi}) = \begin{pmatrix} \mathbf{P}_z^1 \\ \mathbf{P}_z^2 \\ \mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi}) \end{pmatrix} (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_p)^T - \zeta \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \boldsymbol{\alpha} \\ \boldsymbol{\theta} \end{pmatrix} = \mathbf{0}, \quad (3.13)$$

wobei die Notation der in Kapitel 3.2.2 verwendeten entspricht. Zu Beginn des Fortsetzungsprozesses wird zunächst ein Punkt ausgewählt, der sicher Element der ILDM ist; eine gute Wahl ist dabei das chemische Gleichgewicht<sup>4</sup>. Ausgehend von diesem Startpunkt werden sukzessive weitere Punkte der ILDM berechnet, die ebenfalls Elemente der ILDM sind. Dabei steht im Gleichungssystem (3.13)  $\boldsymbol{\psi}_p$  jeweils für den Zustand eines bereits vorhandenen ILDM-Punktes,  $\boldsymbol{\psi}$  entspricht dem neu zu berechnenden ILDM-Punkt in der Umgebung von  $\boldsymbol{\psi}_p$ .

<sup>4</sup>Das chemische Gleichgewicht entspricht bei gleichen Größen Druck, Enthalpie und Elementzusammensetzung der nulldimensionalen ILDM und ist damit aufgrund der hierarchischen Struktur von ILDMs (siehe Kapitel 3.4) auf jeden Fall Teil aller höherdimensionalen ILDMs.

Bei der Wahl eines Algorithmus für den mehrdimensionalen Fortsetzungsprozess sind mehrere Aspekte zu berücksichtigen. Der Gitteraufbau muss effizient erfolgen, zudem muss währenddessen ständig überprüft werden, ob sich die tabellierten Werte im physikalisch sinnvollen Bereich befinden (siehe Ausführungen dazu in Kapitel 3.2.1). Die Parametrisierung sollte zur Erzielung einer optimalen Anpassung des Gitters an den Reaktionsfortschritt lokal angepasst werden; die Dimension des detaillierten und des reduzierten Mechanismus dürfen durch den Algorithmus nicht begrenzt werden. Diese Forderungen werden am Besten durch ein Prädiktor-Korrektor-Verfahren erfüllt [86]. Ausgehend von einem bereits bekannten ILDM-Punkt wird in einem Prädiktor-Schritt ein neuer Punkt geschätzt; dafür werden zunächst die bereits vorliegende Parametrisierung und Schrittweite eingesetzt. Der auf diese Weise vorhergesagte Punkt liegt im Allgemeinen nicht auf der ILDM, so dass seine Lage in einem anschließenden Korrektor-Schritt angepasst wird. Diese Korrektur kann mit unterschiedlichen Verfahren ausgeführt werden, zum Beispiel mit einer Pseudo-Zeit-Relaxation oder einem Newton-Verfahren [86]. Um eine Anpassung des so aufgebauten Gitters an den Reaktionsfortschritt zu realisieren, wird während des Verfahrens ständig die Richtung des Anbaus an die lokalen Verhältnisse angepasst, das heißt, es erfolgt ein ständiges Update der Parametrisierung und der Schrittweite auf Basis der zuvor berechneten Punkte (Details dazu in [86]). Anhand von Randbedingungen wird zudem für jeden Punkt sichergestellt, dass der physikalisch sinnvolle Bereich nicht verlassen wird, es werden also Punkte mit  $T \leq 0$ ,  $p \leq 0$  oder  $\rho \leq 0$  sowie  $w_i \leq 0$  ausgeschlossen; zudem wird in jedem Punkt die Bedingung  $\sum_{i=1}^{n_{spec}} w_i = 1$  überprüft. Schließlich resultiert aus dem Verfahren eine auf den Bereich physikalisch sinnvoller Zustände begrenzte ILDM; dabei ist jeder thermochemische Zustand  $\psi$  in dieser Tabelle repräsentiert durch eine kleine Anzahl (entsprechend der ILDM-Dimension) an Reaktionsfortschrittsvariablen  $\theta^5$ .

### 3.4 Hierarchische Generierung

Die Generierung von ILDMs kann wesentlich vereinfacht und beschleunigt werden, wenn hierarchische Strukturen genutzt werden, die sowohl für detaillierte als

<sup>5</sup>Auf diese Reaktionsfortschrittsvariablen wird später noch ausführlich eingegangen, siehe Kapitel 3.5.2.

auch für reduzierte Mechanismen charakteristisch sind. Bei den detaillierten Mechanismen besteht die Hierarchie darin, dass Mechanismen für die Verbrennung höherer Kohlenwasserstoffe immer auch die Mechanismen für die Verbrennung niedriger Kohlenwasserstoffe beinhalten. So ist beispielsweise im Methan-Verbrennungsmechanismus der CO-Verbrennungsmechanismus enthalten, der Methan-Mechanismus ist wiederum Teil des Oktan-Mechanismus und so weiter (siehe zum Beispiel [11], [12], [96], [99], [146]). Mit diesem Wissen ist es möglich, ILDMs höherer Kohlenwasserstoffe aus ILDMs niedriger Kohlenwasserstoffe zu erzeugen [96], [99]. Dies ist für diese Arbeit nicht relevant; auf eine nähere Ausführung wird daher verzichtet. Für die reduzierten Mechanismen lässt sich jedoch ebenfalls eine hierarchische Struktur identifizieren, die für eine effiziente Generierung höherdimensionaler ILDMs aus bereits vorhandenen ILDMs sehr interessant ist: Eine  $n_c$ -dimensionale ILDM ist immer Teilmenge der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM. So ist zum Beispiel die 0-dimensionale ILDM  $M^0$  Teilmenge der 1-dimensionalen ILDM  $M^1$ , diese wiederum Teilmenge der 2-dimensionalen ILDM  $M^2$  und so weiter [11], [96]:

$$M^0 \subset M^1 \subset M^2 \subset \dots \subset M^n, \quad (3.14)$$

wobei die ILDM  $M^0$  dem chemischen Gleichgewicht,  $M^n$  dem Zustand des detaillierten Reaktionssystems entspricht. Diese Hierarchie ermöglicht es, eine bereits vorhandene  $n_c$ -dimensionale ILDM als Startlösung für die Erzeugung einer  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM einzusetzen. Die Punkte der  $n_c$ -dimensionalen ILDM können direkt in die  $(n_c + 1)$ -dimensionale ILDM übernommen werden, zudem sind bereits  $m$  der benötigten  $(m + 1)$  Parametrisierungsrichtungen bekannt. Mittels hierarchischer Generierung wird also durch Übernahme bereits bekannter Punkte eine Rechenzeiterparnis erzielt, zudem durch Übernahme der Parametrisierungsrichtungen eine optimale Anpassung des ILDM-Gitters an den Reaktionsfortschritt. Die Vorgehensweise bei der hierarchischen Generierung ist in [96] und [99] detailliert beschrieben; deshalb hier nur ein kurzer Überblick. Zunächst werden die Punkte einer bereits vorhandenen  $n_c$ -dimensionalen ILDM der Speicherstruktur der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM angepasst. Für die Parametrisierung werden die bereits bekannten Parametrisierungsrichtungen verwendet, allerdings wird zur Schließung des Gleichungssystems (3.13) aufgrund der um eins erhöhten Dimension der ILDM (entsprechend der Reduzierung der ILDM-Gleichungen um eins) eine weitere Parametrisierungsrichtung benötigt. Für diese wird Orthogonalität zu den  $n_f$  linken Eigenvektoren von  $\tilde{\mathbf{Z}}_f$  und den  $n_z$  bereits vor-

handenen Vektoren der Parametrisierungsmatrizen der Erhaltungsgrößen,  $\mathbf{P}_z^1(\boldsymbol{\psi})$  und  $\mathbf{P}_z^2(\boldsymbol{\psi})$ , gefordert. Zudem muß die neue Parametrisierungsrichtung orthogonal zu den ebenfalls bereits bekannten  $m$  Vektoren der Parametrisierungsmatrix  $\mathbf{P}_m(\boldsymbol{\psi})$  der Reaktionsfortschrittsvariablen der  $n_c$ -dimensionalen ILDM sein. Fasst man diese Bedingungen zusammen, erhält man eine Bestimmungsgleichung für die fehlende Parametrisierungsrichtung [96]:

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \\ \mathbf{P}_z^1 \\ \mathbf{P}_z^2 \\ \mathbf{P}_r^m(\boldsymbol{\psi}) \end{pmatrix} \cdot \mathbf{P}_r^{1T}(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0}. \quad (3.15)$$

Damit sind alle benötigten Parametrisierungsrichtungen bekannt und die Berechnung der  $(n_c+1)$ -dimensionalen ILDM kann mit dem im Kapitel 3.3 beschriebenen mehrdimensionalen Fortsetzungsverfahren erfolgen.

## 3.5 Implementierung von ILDMs in Flammenrechnungen

Mit dem in den vorausgegangenen Kapiteln beschriebenen Verfahren können ILDMs beliebiger Dimension erzeugt und in Tabellenform abgespeichert werden. Diese Tabellen können in Simulationscodes für Flammenrechnungen oder allgemeiner in CFD-Codes (Computational Fluid Dynamics) zur Berechnung reaktiver Strömungen eingesetzt werden. Da in diesen Berechnungen jedoch ein größerer Bereich des Zustandsraumes erreicht wird, als er von niedrigdimensionalen ILDMs abgedeckt wird (niedrigdimensionale ILDMs existieren nur im Bereich der schnellen Chemie), bedarf es eines Verfahrens, mit dem die ILDMs niedrigdimensional verlängert werden können.

### 3.5.1 Behandlung des Bereichs langsamer Chemie

ILDMs niedriger Dimension mit attraktiven Eigenschaften existieren nicht überall im Zustandsraum [26]. Insbesondere im Bereich langsamer Chemie - bei Flammen entspricht dieser Bereich dem Niedertemperaturbereich beziehungsweise der Vorheizzone - existiert keine niedrigdimensionale ILDM; in diesen Regionen ist der

chemische Quellterm vernachlässigbar oder sehr klein. Um einen niedrigdimensionalen Ansatz auch für diesen Bereich des Zustandsraumes zu finden, wurde in [4], [26] und [28] ein Ansatz zur Aufspaltung des Zustandsraumes in drei Domänen vorgeschlagen. In der ersten Domäne, die von der chemischen Kinetik bestimmt wird, kommt das ILDM-Konzept zur Anwendung. Die zweite Domäne entspricht dem Bereich starker Kopplung zwischen physikalischen und chemischen Prozessen, die dritte dem Bereich langsamer Chemie, der durch die Dominanz der physikalischen Prozesse bei verschwindendem chemischem Quellterm charakterisiert ist. Für die meisten Anwendungen kann davon ausgegangen werden, dass die zweite Domäne keinen eigenständigen Bereich bildet, sondern dass sie asymptotisch in die Grenze zwischen den Domänen eins und drei übergeht; sie wird daher vernachlässigt. Eine Beschreibung der dritten Domäne kann durch Betrachtung des Verhaltens eines durch die Gleichung (3.18) beschriebenen reaktiven Systems gewonnen werden, wenn der chemische Quellterm vernachlässigt wird; zudem wird von gleichen Diffusivitäten ausgegangen<sup>6</sup>. Unter diesen Voraussetzungen verhält sich das System aufgrund der Eigenschaften des Diffusionsterms linear und jede Linearkombination im Zustandsraum beziehungsweise jede lineare Mannigfaltigkeit ist invariant [4]. Zudem befindet sich die stationäre Lösung eines derart vereinfachten Systems im Bereich der langsamen Chemie nahe der Mischungslinie (in vorgemischten Flammen ist diese gegeben durch die Verbindung zwischen unverbranntem und verbranntem Zustand). Mit diesen Eigenschaften ergibt sich ein Ansatz für die Erweiterung von ILDMs in den Bereich der langsamen Chemie: Eine aus lokal linearen Hyperflächen bestehende Mannigfaltigkeit, die den Rand der ILDM mit dem Mischungspunkt (im Fall vorgemischter Systeme gegeben durch den Zustand im Unverbrannten) verbindet [28]. Um diese Mannigfaltigkeit zu berechnen, wird die im Gleichungssystem (3.11) enthaltene ILDM-Gleichung beginnend am Rand der ILDM<sup>7</sup> durch die Gleichung:

$$\mathbf{P}^\perp(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\mathbf{I} - \mathbf{V}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{V}^\perp(\boldsymbol{\psi})) \cdot (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_{ub}) = \mathbf{0} \quad (3.16)$$

ersetzt. Dabei ist  $\mathbf{P}^\perp(\boldsymbol{\psi})$  das orthogonale Komplement der Parametrisierungsmatrix,  $\mathbf{I}$  die Einheitsmatrix und  $\boldsymbol{\psi}_{ub}$  der unverbrannte Punkt.  $\mathbf{V}(\boldsymbol{\psi})$  ist gegeben

<sup>6</sup>Die Betrachtung ist auch für ungleiche Diffusivitäten möglich, siehe dazu [4].

<sup>7</sup>Der Rand der ILDM ist durch zwei Bedingungen gegeben, wobei  $\varepsilon$  ein kleiner, benutzerdefinierter Wert ist und  $\tau_{phys}$  eine physikalische Zeitskala:  
 $\boldsymbol{\psi}_{boundary} : Re\left(\frac{\lambda_{n_s}}{\lambda_{n_s+1}}\right) \geq \varepsilon \quad \wedge \quad \boldsymbol{\psi}_{boundary} : \frac{1/\tau_{phys}}{Re(\lambda_{n_s+1})} \geq \varepsilon.$

durch

$$\mathbf{V}(\boldsymbol{\psi}) = (\boldsymbol{\psi} - \boldsymbol{\psi}_{ub}) \cdot \mathbf{e} + \mathbf{T}(\boldsymbol{\psi}_p), \quad (3.17)$$

mit dem Einheitsvektor  $\mathbf{e} = (1, \dots, 1)^T$  und dem ILDM-Randpunkt  $\boldsymbol{\psi}_p$ .  $\mathbf{T}(\boldsymbol{\psi}_p)$  ist der Raum, der lokal tangential an den ILDM-Rand anschließt, siehe dazu [28].

Das Verfahren der Parametrisierung entspricht dem in Kapitel 3.2.2 beschriebenen; ebenso wird für die Berechnung der Erweiterungszellen das gleiche mehrdimensionale Fortsetzungsverfahren eingesetzt, das auch bei der ILDM zur Anwendung kam (siehe Kapitel 3.3, [86]).

### 3.5.2 Generalisierte Koordinaten

Mit dem Gleichungssystem für die ILDM (3.11) beziehungsweise für ihre Erweiterung (3.16) und dem in Kapitel 3.3 beschriebenen Fortsetzungsverfahren können bei Verwendung einer geeigneten Parametrisierung (siehe Kapitel 3.2.2) optimal an den Reaktionsfortschritt angepasste Gitter erzeugt und an jedem Knoten des Gitters die notwendigen Werte wie Spezieskonzentrationen tabelliert werden. Die Tabellierung erfolgt dabei in Bezug auf  $n_s$  Reaktionsfortschrittsvariable. Wird die ILDM-Tabelle<sup>8</sup> dann bei der Berechnung reaktiver Strömungen eingesetzt, so werden die Erhaltungsgleichungen für diese Reaktionsfortschrittsvariablen gelöst und die anderen Werte durch eine anschließende Interpolation in der ILDM-Tabelle gewonnen. In vielen Anwendungen werden als Reaktionsfortschrittsvariable fixe, physikalisch sinnvolle Größen eingesetzt, zum Beispiel Massenbrüche einzelner Spezies oder auch Kombinationen verschiedener Spezies [11]. Dies bietet den Vorteil einer stets anschaulichen Bedeutung der Reaktionsfortschrittsvariablen. Nachteilig ist dagegen, dass bei der Verwendung von fixen Reaktionsfortschrittsvariablen eine Mehrdeutigkeit bei der Interpolation auftreten kann. Zudem sind derartige fixe Reaktionsfortschrittsvariable nicht optimal an den Reaktionsfortschritt angepasst, was gegebenenfalls zu numerischen Problemen führt. Als Beispiel seien Bereiche des Zustandsraumes genannt, in denen sich die fixen Reaktionsfortschrittsvariablen nur wenig ändern, während gleichzeitig andere Spezies einer großen Änderung unterliegen. Da die Forderung nach optimaler Anpassung an den Reaktionsfortschritt bereits für das Fortsetzungsverfahren formuliert (Kapitel

<sup>8</sup>Unter „ILDM-Tabelle“ wird im Folgenden die aus eigentlicher ILDM und ihrer Erweiterung in den Bereich der langsamen Chemie (siehe Kapitel 3.5.1) bestehende Tabelle verstanden.

3.3) und bei der Parametrisierung der ILDM berücksichtigt (Kapitel 3.2.2) wurde, bietet es sich an, die Parameter des Reaktionsfortschritts (siehe Gleichung (3.10)) als Tabellierungskoordinaten einzusetzen. Diese Koordinaten  $\boldsymbol{\theta} = (\theta_1, \dots, \theta_m)^T$  werden generalisierte Koordinaten genannt [3], [4] und bieten nicht nur den Vorteil einer optimalen Anpassung an den Reaktionsfortschritt, sondern gewährleisten auch die Eindeutigkeit bei der Interpolation: Jeder tabellierte Knoten besitzt eine in der Tabelle nur einmalig auftretende Kombination generalisierter Koordinaten. Darüberhinaus ermöglicht die Gitterstruktur der generalisierten Koordinaten - orthogonal und äquidistant - den Einsatz eines linearen Interpolationsverfahrens (Verzicht auf aufwändige, rechenzeitintensivere Verfahren) und garantiert numerische Robustheit bei der Integration (siehe [3], [4]). Die generalisierten Koordinaten bieten damit insgesamt eine effiziente Möglichkeit der Tabellierung von ILDMs und ihrer Erweiterung sowie eine robuste Implementierung der Tabellen (siehe dazu das nächste Kapitel 3.5.3). Die in dieser Arbeit eingesetzten ILDM-Tabellen wurden mit dem Programmpaket HOMREA [84] erzeugt, das alle bisher beschriebenen Algorithmen beinhaltet. Vor dem Einsatz der Tabellen in einem Programm zur Flammenrechnung ist eine Projektion der Erhaltungsgleichungen in die Reaktionsfortschrittsvariablen erforderlich (unabhängig davon, ob generalisierte Koordinaten oder fixe Größen als Reaktionsfortschrittsvariable gewählt werden).

### 3.5.3 Implementierung

Der Einsatz von ILDM-Tabellen in Codes zur Flammenrechnung (oder allgemein: zur Berechnung reaktiver Strömungen, CFD-Codes) erfordert eine Anpassung des in diesen Codes enthaltenen Systems der Erhaltungsgleichungen. In allgemeiner Form sind die Erhaltungsgleichungen für ein reaktives System gegeben durch [84]:

$$\frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial t} = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) - \mathbf{v} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi}) - \frac{1}{\rho} \cdot \text{div}(\mathbf{D}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi})), \quad (3.18)$$

wobei  $\mathbf{v}$  für das Geschwindigkeitsfeld steht,  $\rho$  für die Dichte und  $\mathbf{D}$  für die Matrix der Transportkoeffizienten mit der Dimension  $(n \times n)$  [146]. Das System (3.18) beschreibt die zeitliche Entwicklung des reaktiven Systems im  $n$ -dimensionalen Zustandsraum. Bei Implementierung einer ILDM-Tabelle werden die Erhaltungsgleichungen jedoch nur für die zur Tabellierung eingesetzten Reaktionsfortschrittsvariablen gelöst und anschließend die zugehörigen restlichen Werte aus der

Tabelle interpoliert. Daher muss das Gleichungssystem (3.18) so projiziert werden, dass es die Entwicklung der Reaktionsfortschrittsvariablen beschreibt. Bei Anwendung des im vorhergehenden Kapitel 3.5.2 diskutierten Tabellierungsverfahrens entspricht dies einer Projektion in die generalisierten Koordinaten  $\theta$ . Eine weitere Betrachtung ist vor Durchführung der Projektion notwendig: Bei der Herleitung der ILDM-Gleichungen (siehe Kapitel 3.2) wurden physikalische Prozesse vernachlässigt, im System (3.18) sind sie jedoch enthalten. Entsprechend muss diskutiert werden, wie physikalische Prozesse im Rahmen des ILDM-Konzeptes behandelt werden<sup>9</sup>. Betrachtet man lediglich die chemische Dynamik, so ist sie durch eine Bewegung des Systemzustandes auf einer ILDM vollständig beschreibbar. Da sich die entkoppelten, schnell relaxierenden chemischen Prozesse auf der ILDM im lokalen chemischen Gleichgewicht befinden, ist der Quellterm dieser schnellen Prozesse nicht in der Lage, den Systemzustand von der ILDM weg zu bewegen. In der ILDM-Theorie werden physikalische Prozesse als Störung dieser chemischen Dynamik betrachtet, die die Bewegung innerhalb der ILDM und von ihr weg zu beeinflussen suchen. Die physikalischen Prozesse sind dabei in ihrer Wirkung unterschiedlich: Ein rein konvektiver Prozess kann einen Zustand nicht verändern, sondern diesen lediglich im Raum [146] verschieben. Entsprechend entsteht durch Konvektion keine Bewegung von der ILDM weg oder - anders formuliert - es treten bei konvektiven Prozessen keine Komponenten der Bewegung auf, die senkrecht zur ILDM stehen. Anders verhält sich dies bei Transportprozessen: Diese versuchen, den Zustand von der ILDM weg zu bewegen. Ihr Richtungsvektor kann in zwei Komponenten zerlegt werden: In eine Komponente tangential zur ILDM (in Richtung der langsamen Eigenvektoren) und in eine Komponente senkrecht zur ILDM (in Richtung der schnellen Eigenvektoren). Ist nun die Zeitskala der physikalischen Störung vergleichbar den Zeitskalen der langsamen chemischen Prozesse, so koppelt die tangentielle Komponente der Störung mit den langsamen chemischen Prozessen [84]. Sie bewirkt dann eine Bewegung des Zustands entlang der ILDM und ist somit bei der Beschreibung der chemischen Dynamik zu berücksichtigen [84]. Die senkrechte Komponente der Störung versucht, die Dynamik von der ILDM wegzubewegen. Da die senkrechte Störungskomponente in Richtung der schnellen Eigenvektoren der chemischen Dynamik - also in Richtung schneller Relaxationsprozesse - wirkt, wird sie jedoch schnell auf die ILDM zurück relaxiert und bleibt damit ohne Einfluss [84]. Zu-

<sup>9</sup>Detaillierte Ausführungen dazu finden sich in [4], [84], [85], [86].

sammengefasst wird eine physikalische Störung im Rahmen der ILDM-Theorie korrekt beschrieben, wenn sie auf die lokalen Eigenvektoren, die den langsamen Unterraum (die ILDM) beschreiben, projiziert wird [84]. Wird diese Projektion nun auf das Erhaltungsgleichungssystem (3.18) angewandt, ist sie nur für den Transportterm durchzuführen, da weder der chemische Quellterm noch der Konvektionsterm Komponenten senkrecht zur ILDM aufweisen (siehe oben). Ergebnis der Projektion ist ein  $n$ -dimensionales Gleichungssystem, das die Bewegung der Dynamik des reaktiven Systems auf zur Mannigfaltigkeit tangente Richtungen beschränkt [3]:

$$\frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial t} = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) - \mathbf{v} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi}) - \frac{1}{\rho} \cdot \mathbf{Z}_s(\boldsymbol{\psi}) \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_s(\boldsymbol{\psi}) \cdot \text{div}(\mathbf{D}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi})). \quad (3.19)$$

Damit ist die korrekte Behandlung der physikalischen Prozesse sichergestellt, jedoch handelt es sich immer noch um ein Gleichungssystem, das die Entwicklung des ganzen Zustandsraumes angibt. Es muss also eine weitere Projektion erfolgen und zwar in die generalisierten Koordinaten. Es ergibt sich<sup>10</sup> [3], [4]:

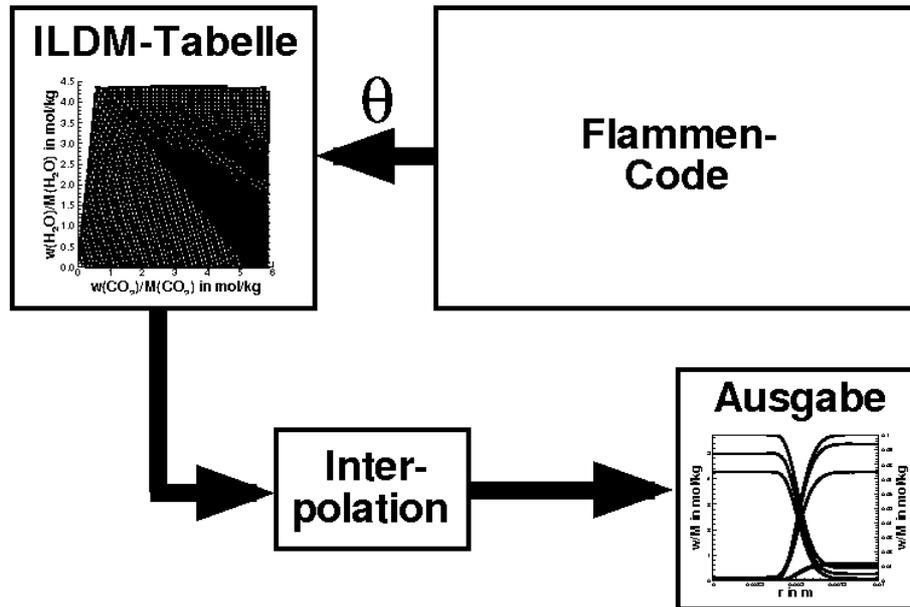
$$\begin{aligned} \frac{\partial \boldsymbol{\theta}}{\partial t} &= \boldsymbol{\psi}_\theta^+ \cdot \mathbf{F} - \mathbf{v} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\theta}) - \frac{1}{\rho} \cdot \boldsymbol{\psi}_\theta^+ \cdot \mathbf{Z}_s \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_s \cdot \text{div}(\mathbf{D} \cdot \boldsymbol{\psi}_\theta \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\theta})) \\ &= \mathbf{U} - \mathbf{v} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\theta}) + \boldsymbol{\Gamma} \cdot \text{div}(\boldsymbol{\Upsilon} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\theta})). \end{aligned} \quad (3.20)$$

Darin ist  $\boldsymbol{\psi}_\theta^+(\boldsymbol{\theta})$  die Moore-Penrose Pseudoinverse von  $\boldsymbol{\psi}_\theta(\boldsymbol{\theta})$  [54].  $\boldsymbol{\psi}$ ,  $\boldsymbol{\psi}_\theta$ ,  $\mathbf{U}$ ,  $\boldsymbol{\Gamma}$ ,  $\boldsymbol{\Upsilon}$  sind ausschließlich Funktionen der generalisierten Koordinate  $\boldsymbol{\theta}$ . Dadurch können nicht nur die Projektionsterme, sondern auch die sich nach der Projektion ergebenden physikalischen Größen bereits bei der Generierung der ILDM-Tabelle berechnet und tabelliert werden.

Beim bisher eingesetzten Implementierungsschema von ILDM-Tabellen wird dabei davon ausgegangen, dass die ILDM-Tabelle komplett vor der Flammenrechnung erzeugt wird und dann dem Programm zur Flammenrechnung<sup>11</sup> zum Einlesen zur Verfügung gestellt wird. Während der Berechnung wird auf die eingelesenen Daten zurückgegriffen. Ein solches Implementierungsschema ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Im Programm zur Flammenrechnung werden die Erhaltungsgleichungen für Gesamtmasse, Impuls und die generalisierten Koordinaten gelöst. Mit

<sup>10</sup>Die Größen  $\mathbf{Z}_s$ ,  $\tilde{\mathbf{Z}}_s$ ,  $\boldsymbol{\psi}_\theta$  und  $\boldsymbol{\psi}_\theta^+$  sind ausschließlich Funktionen von  $\boldsymbol{\theta}$ ;  $\mathbf{F}$  und  $\mathbf{D}$  sind Funktionen von  $\boldsymbol{\psi}(\boldsymbol{\theta})$ . Auf eine Darstellung der Funktionalitäten in der Gleichung wurde aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet.

<sup>11</sup>Selbstverständlich gelten die getroffenen Aussagen allgemein für Berechnungen reaktiver Strömungen und entsprechende Codes. Im Folgenden wird auf Hinweise darauf verzichtet.



**Abbildung 3.3:** Implementierung einer ILDM-Tabelle in einem Programm zur Flammenrechnung.

den sich ergebenden generalisierten Koordinaten  $\theta$  wird ein erster Aufruf der zu Beginn eingelesenen ILDM-Tabelle durchgeführt und die zu den entsprechenden generalisierten Koordinaten gehörenden Terme für die weitere Berechnung (Transport- und Projektionsmatrix, chemische Quellterme) werden interpoliert. Nach dem Integrationsschritt erfolgt eine zweite Interpolation in der ILDM-Tabelle. Dabei wird eine Rücktransformation der generalisierten Koordinaten durchgeführt, also der zu den generalisierten Koordinaten gehörende Zustand  $\psi$  bestimmt und für die Ausgabe bereitgestellt. Daran schließt sich der nächste Rechenschritt an. Bei dieser Form der Implementierung mit einer vorab generierten ILDM-Tabelle hat das Programm zur Flammenrechnung keine Möglichkeit, die hinterlegte Tabelle in irgendeiner Form zu verändern; das Programm kann weder die Dimension der Tabelle ändern, noch zusätzliche Punkte hinzufügen - es handelt sich um reine Lookup-Vorgänge. Eine solche Implementierung war bisher auch im für diese Arbeit verwendeten Programm INSFLA [83], [91] realisiert. INSFLA ist ein Code zur eindimensionalen Simulation instationärer, laminarer Flammen. Darin ist sowohl die Möglichkeit der Verwendung eines detaillierten Mechanismus vorgesehen, als auch die Verwendung von vorab generierten ILDM-Tabellen, wie oben beschrieben. Das für die Berechnung benötigte Anfangsprofil wird in INSFLA in detaillierten Koordinaten erzeugt und dann durch Interpolation in der

vorgegeben ILDM-Tabelle in die generalisierten Koordinaten überführt. Zur Lösung des partiellen Differentialgleichungssystems der Erhaltungsgleichungen führt INSFLA zunächst eine Ortsdiskretisierung mittels finiter Differenzen [83] durch (dabei wird das Gitter automatisch angepasst [83]). Damit wird das partielle Differentialgleichungssystem in ein System aus gewöhnlichen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen überführt, das schließlich mit dem linear impliziten Extrapolationsverfahren Limex [45], [46] zeitlich integriert wird [83].

## 3.6 Entwicklungspotentiale

Das Verfahren zur Reduzierung chemischer Reaktionsmechanismen mit ILDMs ist ein stabiles Verfahren, dessen Theorie bereits weitgehend diskutiert und verbessert wurde (siehe Referenzen in Kapitel 3.1). Dennoch gibt es noch offene Fragen und Entwicklungspotentiale, auf die im Folgenden eingegangen wird.

Als einziger Input in das ILDM-Verfahren - neben der Anzahl der zu entkoppelnden Zeitskalen - ist der detaillierte Mechanismus ein wesentlicher Faktor für die Qualität der resultierenden ILDM; diese kann nur so gut sein, wie der zugrundeliegende detaillierte Mechanismus. Die detaillierten Mechanismen sind jedoch Unsicherheiten ausgesetzt [95]; als Beispiel seien hier die kinetischen Daten genannt, die in Messungen ermittelt werden. Zur Analyse der Auswirkungen derartiger Unsicherheiten oder Änderungen des detaillierten Mechanismus auf ILDMs stand bisher keine Methodik zur Verfügung. Genutzt werden kann das Werkzeug der Sensitivitätsanalyse, das in der Untersuchung von Verbrennungsprozessen eine bedeutende Stellung einnimmt (siehe [146] und Referenzen im Kapitel 2), aber noch nicht auf ILDMs angewandt wurde. In dieser Arbeit wird ein Modell für eine ILDM-Sensitivitätsanalyse entwickelt [71] und in das Programmpaket HOM-REA [84] implementiert; das Modell ermöglicht die Untersuchung der Sensitivität von ILDMs im Hinblick auf kinetische Daten des zugrundeliegenden detaillierten Mechanismus. Kapitel 4 stellt die der Analyse zugrundeliegenden Gleichungen und einige Beispielergebnisse vor.

ILDMs von niedriger Dimension existieren nur in dem Bereich, in dem genügend schnelle chemische Prozesse vorhanden sind und in dem die Separation der Zeitskalen eindeutig ist. Für den Bereich langsamer Chemie, in dem diese beiden Punkte nicht oder nur schlecht gewährleistet sind, müssen alternative Modelle ge-

funden werden, wenn auch hier die Systemdynamik mittels niedrigdimensionaler Mannigfaltigkeiten beschrieben werden soll. Der dafür bisher eingesetzte Ansatz (siehe Kapitel 3.5.1) sieht eine lokal lineare Verlängerung der ILDM vor, bei dem die chemische Dynamik nicht direkt in die Berechnung der Erweiterung eingeht. Verbessert werden kann die Qualität der Erweiterung gegenüber diesem bisherigen Modell, wenn bei ihrer Konstruktion berücksichtigt wird, dass die chemische Dynamik vor der Relaxation auf die  $n_c$ -dimensionale ILDM auf ILDMs der Dimensionen  $(n_c + 1)$ ,  $(n_c + 2)$  und so weiter (Grenzfall wäre die  $n$ -dimensionale Mannigfaltigkeit, also der nicht reduzierte Zustandsraum) relaxiert. Ein entsprechendes Modell, sogenannte hierarchisch erweiterte ILDMs [72], wird in Kapitel 5 vorgestellt. Ein weiterer, noch offener Problembereich ist die Implementierung der ILDM-Tabellen in Programme zur Flammenrechnung (oder allgemeiner in CFD-Codes). Die Berechnung der ILDMs erfolgte bisher vor der Flammenrechnung (vergleiche Kapitel 3.5.3); dabei wird die Tabelle für eine vorgegebene Dimension generiert und umfasst den ganzen Existenzbereich der ILDM und ihrer Erweiterung<sup>12</sup>. Dies ist notwendig, da im Normalfall kein *a priori* Wissen über den während der Flammenrechnung erreichten Teil des Zustandsraumes verwendet werden soll. Mit dieser Vorab-Generierung sind jedoch wesentliche Nachteile verbunden: Der tabellierte Bereich ist wesentlich größer als der Bereich des Zustandsraumes, der während der Flammenrechnung tatsächlich erreicht wird. Dies bewirkt zum einen einen unnötigen Verbrauch von Speicherplatz, als auch zum anderen eine erhöhte Rechenzeit zur Generierung der nicht benötigten Zellen und der Berechnung der für diese Zellen abzuspeichernden Größen. Auch birgt die vorab festzulegende, feste Dimension der Tabelle den Nachteil, dass vorab abgeschätzt werden muss, mit welcher Dimension die besten Ergebnisse erzielt werden können - eine Abschätzung, die durchaus Erfahrung erfordert. Den genannten Problemen kann begegnet werden, indem die ILDM-Tabelle nicht mehr vorab, sondern on-demand mit der Flammenrechnung generiert wird; dabei sollte die Möglichkeit einer Dimensionserhöhung und Fehlerabschätzung gegeben sein. Kapitel 6 stellt einen neuen Algorithmus dazu sowie Beispielrechnungen vor [72]. Die ILDM-Methode wurde bisher erfolgreich für verschiedenste Flammentypen und Verbrennungsprozesse angewandt (siehe Referenzen im Kapitel 6), ebenso

<sup>12</sup>Existenzbereich meint den Bereich der mathematischen Existenz von ILDM und Erweiterung der ILDM, der zudem durch die Forderung physikalisch sinnvoller Werte (siehe dazu Kapitel 3.3) begrenzt ist.

---

für andere Prozesse wie Überschallströmungen [123]. Ein bisher noch unbekanntes Anwendungsgebiet sind Flammen, die einer Störung der Gemischzusammensetzung oder des Strömungsfeldes unterworfen sind. Die Untersuchung solcher gestörter Flammen ist insbesondere im Kontext mager betriebener Gasturbinen von Interesse [32]. In Kapitel 7 werden solche Analysen vorgestellt und eine Strategie für die Beschreibung gestörter Flammen im Rahmen reduzierter Mechanismen vorgeschlagen [72], basierend auf Untersuchungen zur Ausbreitung der Störung und der Reaktion der Flamme auf die Störung.



# Kapitel 4

## Sensitivitäten von ILDMs im Hinblick auf kinetische Daten

Im Rahmen der Analyse detaillierter Reaktionsmechanismen ist die Sensitivitätsanalyse ein Standardwerkzeug, das die Bestimmung wichtiger Reaktionen im Reaktionsmechanismus erlaubt und mit dessen Hilfe es auch möglich ist, die Auswirkung von Änderungen in den Mechanismen abzuschätzen [146]<sup>13</sup>. Als Beispiele für solche Änderungen in detaillierten Reaktionsmechanismen seien die Werte der kinetischen Daten (beispielsweise Geschwindigkeitskoeffizienten oder Aktivierungsenergien [146]) genannt. Diese werden experimentell ermittelt und sind damit Schwankungen unterworfen, die zum Beispiel aus Messungenauigkeiten resultieren können. Zudem können durch die Weiterentwicklung bestehender oder durch Neuentwicklung von Messverfahren Abweichungen in den Daten zustandekommen [95]. Derartige Änderungen im detaillierten Mechanismus wirken sich auch auf ILDMs aus, da die Methode den detaillierten Mechanismus als einzigen Input neben dem gewünschten Grad der Reduktion (angegeben in Form der ILDM-Dimension) verwendet und dessen Qualität daher ein wesentlicher Punkt für die Qualität einer ILDM ist. Wünschenswert ist daher eine Analysemethodik, die es erlaubt, den Einfluss kinetischer Daten des detaillierten Mechanismus auf die ILDM zu quantifizieren. Zudem ist von Interesse, ob es sich bei den Reak-

---

<sup>13</sup>Zur Bedeutung und Funktionsweise der Sensitivitätsanalysen siehe auch Kapitel 2 und die dort angegebenen Referenzen. Für Vergleiche unterschiedlicher Modelle zur Sensitivitätsanalyse siehe [151].

tionen, deren kinetische Daten besonders großen Einfluß auf die ILDM haben, um die gleichen Reaktionen handelt, die auch im detaillierten Mechanismus von großer Bedeutung sind. Ein geeignetes Vorgehen zur Beantwortung dieser Fragen ist eine Sensitivitätsanalyse, die bisher noch nicht auf ILDMs angewandt wurde; in den folgenden Kapitel wird ein entsprechendes mathematisches Modell vorgestellt und einige Ergebnisse diskutiert [71].

## 4.1 Mathematisches Modell

Ausgangspunkt für die Formulierung der ILDM-Sensitivitätsanalyse ist ein reaktives System, bei dem physikalische Prozesse vernachlässigt werden (wie bereits im Kapitel 3.2 bei der Herleitung der ILDM-Gleichungen beschrieben). Dabei ist  $\mathbf{F}$  nicht nur eine Funktion des Vektors der Zustandsgrößen  $\boldsymbol{\psi}$ , sondern auch eine Funktion von Parametern  $\mathbf{p}$ :

$$\frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial t} = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}; \mathbf{p}). \quad (4.1)$$

Die Parameter  $\mathbf{p}$  entsprechen kinetischen Daten, wie beispielsweise den Geschwindigkeitskoeffizienten der betrachteten Reaktionen. Im Folgenden wird aus Gründen der einfacheren Darstellung lediglich die Abhängigkeit von einem Parameter  $p$  angenommen. Dies stellt keine Einschränkung der Allgemeingültigkeit der abgeleiteten Gleichungen dar, da im Falle mehrerer gestörter Parameter das resultierende Gleichungssystem lediglich für alle gestörten Parameter nacheinander gelöst werden muss. Ergänzt man die in Kapitel 3.2 eingeführte Gleichung (3.8) für die ILDM des Systems um die Abhängigkeit vom Parameter  $p$ , so ergibt sich

$$\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}; p) = \mathbf{G}(\boldsymbol{\psi}; p) = \mathbf{0}, \quad (4.2)$$

also wieder ein  $n_f$ -dimensionales Gleichungssystem für  $n$  Unbekannte. Da  $\mathbf{F}$  nicht nur eine Funktion von  $\boldsymbol{\psi}$  ist, sondern auch vom Parameter  $p$  abhängt, ist auch  $\tilde{\mathbf{Z}}_f$  eine Funktion von  $\boldsymbol{\psi}$  und  $p$ . Ziel der Analyse ist es, die Abhängigkeit der ILDM von einer Änderung des Parameters  $p$  zu identifizieren. Dazu wird die partielle Ableitung von  $\mathbf{G}$  nach  $p$  gebildet und man erhält mit dem  $n$ -dimensionalen Vektor  $\partial \boldsymbol{\psi} / \partial p$  der Sensitivitäten:

$$\mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial p} + \mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}; p) = \mathbf{0}, \quad (4.3)$$

wobei  $\mathbf{G}_\psi(\boldsymbol{\psi}; p)$  die  $(n_f \times n)$ -dimensionale Matrix partieller Ableitungen von  $\mathbf{G}(\boldsymbol{\psi}; p)$  nach  $\boldsymbol{\psi}$  bezeichnet und  $\mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}, p)$  den  $n_f$ -dimensionalen Vektor partieller Ableitungen von  $\mathbf{G}(\boldsymbol{\psi}; p)$  nach  $p$ . Das System (4.3) ist ein unterbestimmtes,  $n_f$ -dimensionales Gleichungssystem für den  $n$ -dimensionalen Vektor der Sensitivitäten. Ursache für die Unterbestimmtheit ist, dass nur diejenigen Komponenten der Sensitivität durch (4.3) erfasst werden, die senkrecht zur ILDM stehen; tangentielle Sensitivitätskomponenten werden nicht erfasst. Da diese jedoch nur die Bewegung innerhalb der Mannigfaltigkeit charakterisieren, sind sie hier auch nicht von Interesse. Die senkrechten Komponenten dagegen geben an, welche Tendenz besteht, einen Zustand von der Mannigfaltigkeit wegzuziehen und sind somit im gegebenen Kontext entscheidend<sup>14</sup>. Nutzt man diese Erkenntnis über die Wirkung der einzelnen Sensitivitätskomponenten, so erhält man eine Gleichung, die den Sensitivitätsvektor als Linearkombination der  $n_f$  senkrecht zur ILDM stehenden Vektoren ausdrückt. Für die implizit definierte Mannigfaltigkeit sind diese Vektoren gegeben durch die Transponierte der Matrix der partiellen Ableitungen von  $\mathbf{G}(\boldsymbol{\psi}; p)$  nach  $\boldsymbol{\psi}$ . Der Sensitivitätsvektor  $\mathbf{S}(\boldsymbol{\psi}; p)$  ergibt sich dann als:

$$\mathbf{S}(\boldsymbol{\psi}; p) = \frac{\partial \hat{\boldsymbol{\psi}}}{\partial p} = \mathbf{G}_\psi^T(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p). \quad (4.4)$$

$\hat{\boldsymbol{\psi}}$  ist der  $n_f$ -dimensionale, auf die zur ILDM senkrecht stehenden Richtungen projizierte Zustandsvektor. Ebenfalls von der Dimension  $n_f$  ist der Vektor  $\mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p)$ , er enthält die Koeffizienten der Linearkombination. Zur Berechnung der unbekanntenen Größe  $\mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p)$  wird Gleichung (4.4) in Gleichung (4.3) eingesetzt und die resultierende Gleichung nach  $\mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p)$  aufgelöst:

$$\begin{aligned} \mathbf{0} &= \mathbf{G}_\psi(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{G}_\psi^T(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p) + \mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}; p) \\ \mathbf{x}(\boldsymbol{\psi}; p) &= -(\mathbf{G}_\psi(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{G}_\psi^T(\boldsymbol{\psi}; p))^{-1} \cdot \mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}; p). \end{aligned} \quad (4.5)$$

Einsetzen von Gleichung (4.5) in Gleichung (4.4) ergibt schließlich für die Sensitivität der ILDM:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}(\boldsymbol{\psi}; p) &= -\mathbf{G}_\psi^T(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot (\mathbf{G}_\psi(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{G}_\psi^T(\boldsymbol{\psi}; p))^{-1} \cdot \mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}; p) \\ &= -\mathbf{G}_\psi^+(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{G}_p(\boldsymbol{\psi}; p). \end{aligned} \quad (4.6)$$

<sup>14</sup>Eine ausführliche Diskussion der beiden Komponenten der Sensitivität findet sich in [129]; außerdem ist anzumerken, dass die Sensitivität der Bewegung innerhalb der ILDM durch eine Projektion des Sensitivitätsvektors auf die ILDM erhalten werden kann.

$\mathbf{G}_\psi^+(\psi; p)$  ist dabei die Moore-Penrose-Pseudoinverse der Matrix  $\mathbf{G}_\psi(\psi; p)$  [54]:

$$\mathbf{G}_\psi^+(\psi; p) = \mathbf{G}_\psi^T(\psi; p) \cdot (\mathbf{G}_\psi(\psi; p) \cdot \mathbf{G}_\psi^T(\psi; p))^{-1}. \quad (4.7)$$

Die Invertierbarkeit des Produktes  $(\mathbf{G}_\psi(\psi; p) \cdot \mathbf{G}_\psi^T(\psi; p))$  ist aufgrund des vollen Ranges der Matrix  $\mathbf{G}_\psi(\psi; p)$  für eine  $(n \times n_f)$ -dimensionale ILDM sichergestellt; bei der Berechnung der Pseudo-Inversen treten daher keine Probleme auf.

Der Vektor  $\mathbf{S}(\psi; p)$  gibt die Änderung  $\partial\hat{\psi}/\partial p$  senkrecht zur ILDM an, wenn der Parameter  $p$  gestört wird; mit der Gleichung (4.6) kann er an jedem Punkt der ILDM berechnet werden. Bei der Lösung der Gleichung (4.6) können allerdings numerische Probleme auftreten, da die Algorithmen für die Berechnung invarianter Unterräume den Unterraum  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p)$  gegebenenfalls mit einer beliebigen Skalierung ausgeben [86]. Dies führt bei Anwendung finiter Differenzen für die Approximation von  $\mathbf{G}_\psi(\psi; p)$  und  $\mathbf{G}_p(\psi; p)$  zu Problemen. Umgangen werden kann diese Problematik, wenn die ILDM-Gleichung (3.8) durch eine skalierungs-invariante Formulierung ersetzt wird; anstelle von  $\mathbf{G}(\psi; p)$  wird deshalb

$$\hat{\mathbf{G}}(\psi; p) = (\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p) \cdot \mathbf{K})^{-1} \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p) \cdot \mathbf{F}(\psi; p) \quad (4.8)$$

verwendet. Die Matrix  $\mathbf{K}$  ist dabei zur Sicherstellung der Invertierbarkeit des Produktes  $(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p) \cdot \mathbf{K})$  so zu wählen, dass die aus dem Produkt  $(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p) \cdot \mathbf{K})$  resultierende Matrix regulär ist, also vollen Rang hat.  $\hat{\mathbf{G}}(\psi; p)$  ist dann invariant gegenüber beliebigen Skalierungen der Matrix  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi; p)$ ; die weiteren Rechenschritte zur Ermittlung von  $\mathbf{S}(\psi)$  werden mit dem skalierungsinvarianten Ansatz völlig analog zu oben durchgeführt.

Die vorgestellten Gleichungen für die ILDM-Sensitivitätsanalysen wurden in das Tool zur Berechnung von ILDMs, HOMREA [84], eingebaut. Damit sind Analysen von ILDMs beliebiger Dimension und von detaillierten Reaktionsmechanismen beliebiger Größe möglich. An jedem Punkt der ILDM kann die Sensitivität der ILDM gegenüber Änderungen beliebiger Parameter des detaillierten Reaktionsmechanismus berechnet werden. Hierzu seien schließlich noch einige Aussagen zum Rechenzeit-Bedarf der ILDM-Sensitivitätsanalyse gemacht. Die Matrizen  $\mathbf{G}_\psi(\psi)$  und  $\mathbf{G}_p(\psi)$ , die die partiellen Ableitungen von  $\mathbf{G}(\psi)$  enthalten, werden in dieser Arbeit mit einer Finiten-Differenzen-Approximation berechnet. Natürlich erfordert diese Berechnung etliche Rechenschritte. Auf einem dem aktuellen Standard entsprechenden PC benötigt die Berechnung einer 2d-Synthesegas/Luft-ILDM (ohne Verwendung der 1d-ILDM als Startlösung) ungefähr 99 s, die zusätzliche Berechnung der Sensitivitäten benötigt 35 s, was etwa 40% der Rechenzeit

der ILDM selbst entspricht. Der Rechenzeit-Bedarf könnte durch Verwendung einer Störungsanalyse in Verbindung mit einer analytischen Differentiation noch reduziert werden; aufgrund der geringen Gesamtdauer der Rechnungen scheint dies aber nicht notwendig.

## 4.2 Vergleich der ILDM-Sensitivität mit der eines perfekten Rührreaktors

In der Einleitung wurde erwähnt, dass Sensitivitätsanalysen ein bei der Untersuchung von Verbrennungssystemen sehr häufig eingesetztes Analysetool sind (siehe Kapitel 2 und [146]). Vor diesem Hintergrund stellt sich die Frage, inwieweit die Sensitivitätsanalysen detaillierter Mechanismen und die hier vorgestellte Sensitivitätsanalyse von ILDMs zusammenhängen und ob sie ähnliche Ergebnisse liefern. Ein Vergleich zwischen der ILDM-Sensitivitätsanalyse und einer Sensitivitätsanalyse detaillierter Mechanismen soll diese Frage beantworten. Als Beispiel für die Analyse eines detaillierten Systems wird die Sensitivitätsanalyse eines perfekten Rührreaktors (PSR = Perfectly Stirred Reactor, offenes homogenes Reaktionssystem) mit der ILDM-Sensitivitätsanalyse verglichen. Zunächst muss dazu die mit der ILDM-Sensitivität vergleichbare Sensitivität des PSR bestimmt werden. Ausgangspunkt dafür ist die Erhaltungsgleichung, die einen PSR im stationären Zustand beschreibt [84]:

$$0 = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}, p) + \omega \cdot (\boldsymbol{\psi}^{mix} - \boldsymbol{\psi}). \quad (4.9)$$

In dieser Gleichung entspricht  $\omega$  dem Kehrwert der charakteristischen Verweilzeit von Reaktanden im Reaktor; sie ergibt sich als Quotient aus dem Volumen des Reaktors und dem Massenstrom des zugemischten Systems multipliziert mit seiner Dichte. Vereinfachend wird  $\omega$  im Folgenden „Mischungszeitskala“ genannt.  $\boldsymbol{\psi}^{mix}$  ist der thermochemische Zustandsvektor, der das zugemischte System charakterisiert. Die Sensitivität eines solchen PSR,  $\mathbf{S}^{PSR}(\boldsymbol{\psi}; p)$ , ergibt sich als:

$$\mathbf{S}^{PSR}(\boldsymbol{\psi}; p) = \frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial p} = -(\mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}; p) - \omega \cdot \mathbf{I})^{-1} \cdot \mathbf{F}_p(\boldsymbol{\psi}; p). \quad (4.10)$$

Da bei der ILDM-Sensitivitätsanalyse lediglich die zur ILDM senkrechten Komponenten erfasst wurden (siehe dazu Kapitel 4.1), muss nun eine Projektion der

Sensitivität des PSR in den zur ILDM senkrechten Raum erfolgen. Nach dieser Projektion lautet die Gleichung für die PSR-Sensitivität:

$$\hat{\mathbf{S}}^{PSR}(\boldsymbol{\psi}; p) = -\mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}^+(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot \mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}; p) \cdot (\mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}; p) - \omega \cdot \mathbf{I})^{-1} \cdot \mathbf{F}_p(\boldsymbol{\psi}; p). \quad (4.11)$$

Mit der Zerlegung der Jacobimatrix  $\mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}$  entsprechend der Gleichung (3.2) erhält man (auf die Darstellung der funktionellen Abhängigkeit der Größen von  $\boldsymbol{\psi}$  und  $p$  wird im Folgenden aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet):

$$\hat{\mathbf{S}}^{PSR} = -\mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}^+ \cdot \mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}} \cdot \left\{ \mathbf{Z} \cdot \begin{pmatrix} \mathbf{N}_s & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{N}_f \end{pmatrix} \cdot \mathbf{Z}^{-1} - \omega \mathbf{I} \right\}^{-1} \cdot \mathbf{F}_p. \quad (4.12)$$

Diese Gleichung kann vereinfacht werden, wenn für  $\mathbf{Z}$  nur kleine Änderungen in Abhängigkeit von  $\boldsymbol{\psi}$  angenommen werden. Für  $\mathbf{G}_p$  und  $\mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}$  ergibt sich dann:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_p &\approx \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}_p \\ \mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}} &\approx \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}} = \mathbf{N}_f \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f. \end{aligned} \quad (4.13)$$

Einsetzen in Gleichung (4.12) führt für  $\hat{\mathbf{S}}^{PSR}$  schließlich zu dem Ausdruck

$$\hat{\mathbf{S}}^{PSR} \approx -\mathbf{G}_{\boldsymbol{\psi}}^+ \cdot \mathbf{N}_f \cdot (\mathbf{N}_f - \omega \cdot \mathbf{I})^{-1} \cdot \mathbf{G}_p, \quad (4.14)$$

der die Sensitivität des PSR senkrecht zur ILDM angibt. Ein Vergleich dieser Sensitivität mit der durch Gleichung (4.6) gegebenen ILDM-Sensitivität zeigt, dass sich die beiden Sensitivitäten (nach erfolgter Projektion der PSR-Sensitivität) entsprechen, wenn

$$|\omega| \ll \min |\operatorname{Re}(\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{N}_f))| \quad (4.15)$$

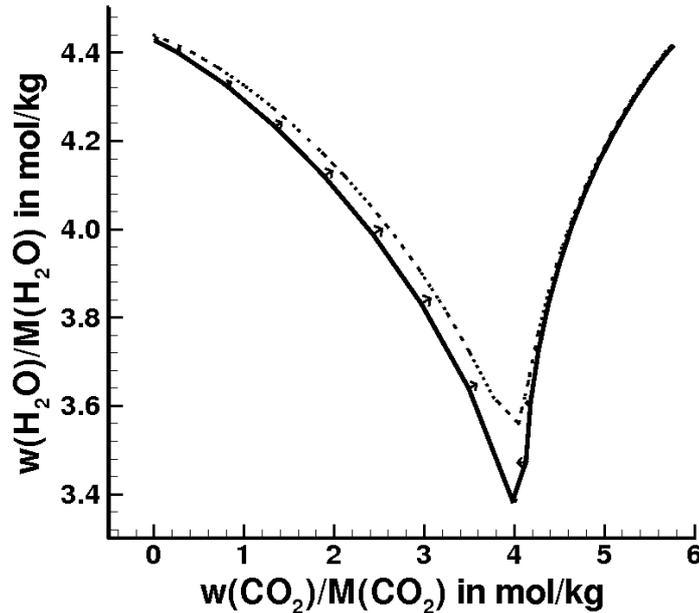
gilt. Dabei bezeichnet  $(\min |\operatorname{Re}(\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{N}_f))|)$  den Eigenwert in der Matrix  $\mathbf{N}_f$ , der den betragsmäßig kleinsten Realteil hat und der damit der langsamsten der entkoppelten Zeitskalen zugeordnet werden kann. Eine Übereinstimmung zwischen ILDM- und PSR-Sensitivität ist also zu erwarten, wenn die Mischungszeitskala sehr viel kleiner ist als die langsamste entkoppelte Zeitskala. Da dies bei Verbrennungsprozessen im Allgemeinen der Fall ist, kann gefolgert werden, dass die Sensitivitäten von PSR und ILDM in den meisten Fällen vergleichbare Eigenschaften aufweisen. Sensitivitätsanalysen detaillierter Mechanismen liefern also automatisch auch Informationen über die Sensitivität des reduzierten Mechanismus und umgekehrt. Beispielsweise kann davon ausgegangen werden, dass die Reaktionen mit besonders großer Bedeutung für den detaillierten Reaktionsmechanismus auch für die ILDM von großer Bedeutung sind.

## 4.3 Ergebnisse

Mit Hilfe des neu entwickelten Analysetools wurden beispielhafte Berechnungen von Sensitivitäten von ILDMs durchgeführt. Für die Rechnungen wurde das stöchiometrische Synthesegas/Luft-System betrachtet, mit einer Synthesegas-Zusammensetzung von 40 Vol.% CO, 30 Vol.% H<sub>2</sub> und 30 Vol.% N<sub>2</sub>. Dieses System mit seinen 13 Spezies und 67 Elementarreaktionen ist zwar sehr einfach, bietet jedoch diverse Vorteile: Erstens erlaubt die geringe Anzahl an Spezies und Reaktionen eine Fokussierung auf die Prinzipien der Berechnungsmethode; zweitens weist das System trotz seiner vermeintlichen Einfachheit alle charakteristischen Eigenschaften eines Verbrennungssystems auf und drittens ist das System sehr gut für Vergleiche mit anderen Arbeiten geeignet, da es im Kontext der ILDM-Methode bereits ausgiebig analysiert wurde<sup>15</sup>. Die Rechnungen wurden für eine Enthalpie von  $H = -6,574 \cdot 10^5$  J (entsprechend einer Temperatur im Unverbrannten von 298 K) durchgeführt, der Druck betrug 1 bar.

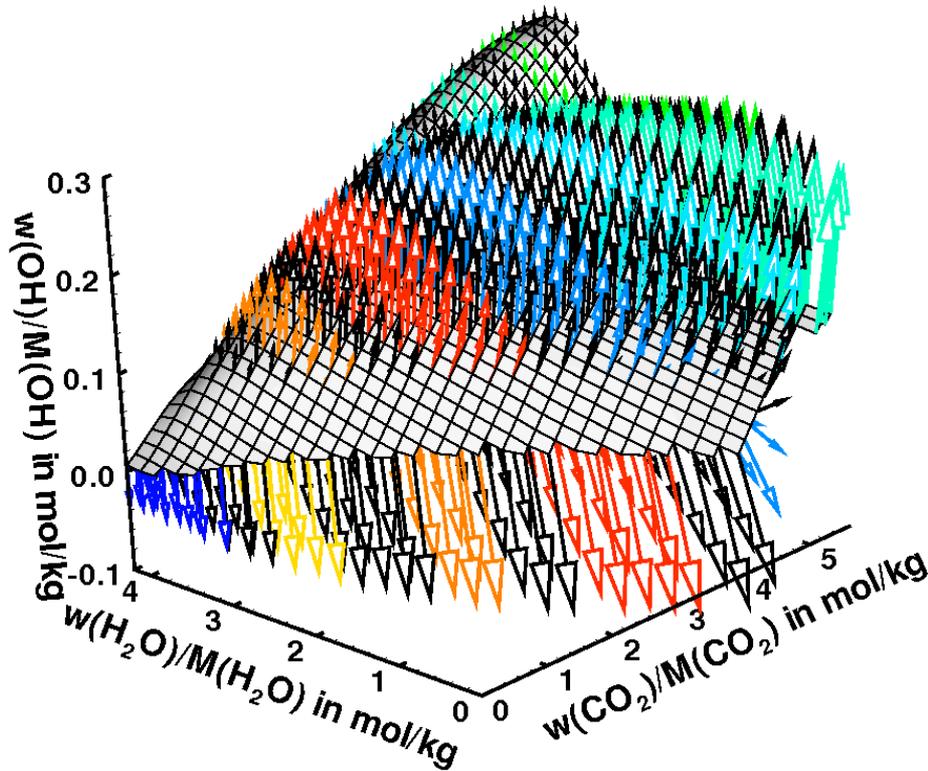
Zunächst soll die Bedeutung der Sensitivitäten an einem einfachen 1d-Beispiel erläutert werden, siehe Abbildung 4.1. Dargestellt ist eine 1d-ILDM (schwarze Linie) des Synthesegas/Luft-Systems in einer Projektion des Zustandsraumes in die CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O-Ebene. In jedem Knotenpunkt der ILDM sind zusätzlich die Sensitivitäten als Pfeile dargestellt, wobei sich die Sensitivitäten auf die Geschwindigkeitskoeffizienten der im Synthesegas/Luft-System sehr wichtigen Reaktion  $H + O_2 + M \rightarrow HO_2 + M$  (siehe [146] und Referenzen im Kapitel 2) beziehen. Bei der Bewertung dieser Sensitivitäten ist zu beachten, dass es sich um relative Sensitivitäten in Bezug auf kinetische Parameter,  $S = \partial\psi/\partial(\ln k)$ , handelt. Die Länge der Sensitivitätspfeile in Abbildung 4.1 wurde so berechnet, dass sie direkt eine Änderung von  $\psi$  in der Form  $\Delta\psi = \mathbf{S} \cdot \Delta p$  widerspiegelt. Gewählt wurde  $\Delta p = \Delta(\ln k) = 0,5$ ; das heißt, der Geschwindigkeitskoeffizient wurde um 50 % erhöht. Die Abbildung 4.1 enthält außerdem noch eine ILDM (gestrichelte Linie), die direkt mit einem gestörten detaillierten Mechanismus berechnet wurde: Der Geschwindigkeitskoeffizient der Reaktion  $H + O_2 + M \rightarrow HO_2 + M$  wurde hier auf 150% seines Originalwertes gesetzt, so dass auch in diesem Fall die Störung bei 50% liegt. Zu erwarten ist, dass die Enden der Sensitivitätspfeile der mit dem ungestörten Mechanismus berechneten ILDM mit der ILDM zusammenfallen, die mit dem gestörten detaillierten Mechanismus berechnet wurde. Aus der Abbil-

<sup>15</sup>Siehe zum Beispiel [3], [71], [84], [86], [96] und die darin jeweils genannten Referenzen.



**Abbildung 4.1:** 1d-ILDMS und Sensitivitäten für das stöchiometrische Synthesegas/-Luft-System, dargestellt als Projektion des Zustandsraumes in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene. Schwarze Linie: 1d-ILDMS; Pfeile: Sensitivitäten der 1d-ILDMS im Hinblick auf die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  für eine Erhöhung des Geschwindigkeitskoeffizienten um 50%; schwarz gepunktete Linie: 1d-ILDMS, berechnet für einen um 50% erhöhten Geschwindigkeitskoeffizienten der Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$ .

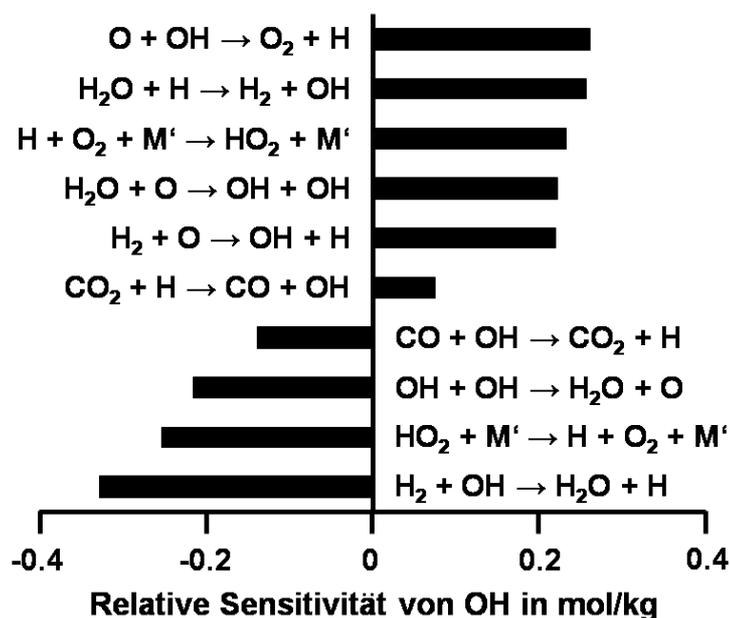
Abbildung 4.1 zeigt, dass dies durchaus der Fall ist. Abweichungen, wie sie zum Beispiel im Bereich um  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} \approx 4,0$  mol/kg deutlich werden, können auf zwei Ursachen zurückgeführt werden: Die Sensitivitätsanalyse ist ein lineares Verfahren; eine Störung von 50%, wie sie hier betrachtet wird, kann damit nur grob angenähert werden. Weiterhin befindet man sich bei diesen  $\text{CO}_2$ -Werten in einem Bereich, in dem die ILDM aufgrund nur geringer Unterschiede in den Zeitskalen sehr sensitiv im Hinblick auf die Änderung kinetischer Daten [86] ist. Beachtet man diese Aspekte, so kann insgesamt von einer sehr guten Übereinstimmung der Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse mit den Ergebnissen resultierend aus dem gestörten detaillierten Mechanismus gesprochen werden. Zur weiteren Veranschaulichung der mit der Sensitivitätsanalyse zu erhaltenden Ergebnisse zeigt Abbildung 4.2 eine 2d-ILDMS des Synthesegas/Luft-Systems. Die berechneten Sensitivitäten sind wieder mit Pfeilen dargestellt und wurden wieder für einen um 50% erhöhten Geschwindigkeitskoeffizienten der Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  ermittelt. Um eine gute Visualisierung zu gewährleisten, wurden



**Abbildung 4.2:** 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems, dargestellt als graue Fläche im  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O-OH}$ -Raum. Die Pfeile sind die Sensitivitäten der ILDM gegenüber der um 50% gestörten Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  (Pfeile mit gemeinsamem Faktor skaliert, Farben dienen nur der besseren Anschauung).

die Sensitivitäten für diese 3d-Darstellung im  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O-OH}$ -Raum mit einem gemeinsamen Faktor skaliert. Die Abbildung zeigt die starke Abhängigkeit der Sensitivitäten von der jeweiligen lokalen Lage des untersuchten Punktes auf der ILDM. So ist die Sensitivität hinsichtlich der genannten Reaktion groß in den Bereichen, die weit vom chemischen Gleichgewicht entfernt sind und klein in der Nähe des Gleichgewichts. Dies ist ein anschaulich erklärbares Resultat, da die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  in den Bereichen niedriger Temperaturen von großer Bedeutung ist, diese Bedeutung jedoch im Bereich hoher Temperaturen verliert [146]. Weiterhin ist aus der Abbildung ersichtlich, dass die Sensitivitäten über der ILDM ihre Richtung deutlich ändern können. Dies bedeutet, dass sich eine Erhöhung des Geschwindigkeitskoeffizienten in einigen Bereichen steigernd auf die Menge an OH auswirkt, in anderen Bereichen absenkend. Insgesamt erlaubt die Sensitivitätsanalyse also qualitative Aussagen über das Verhalten der Sensi-

vitäten in unterschiedlichen Bereichen der ILDM sowie über die Richtungen der Sensitivitäten. Natürlich sind auch quantitative Aussagen möglich; diese werden nun am Beispiel der 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems diskutiert. Zunächst wurden die Sensitivitäten dieser ILDM im Hinblick auf alle 67 Elementarreaktionen des Systems berechnet. Beispielhaft zeigt Abbildung 4.3 die globalen relativen Sensitivitäten für das Radikal OH für die sensitivsten 10 Reaktionen. Dabei handelt es sich um die maximalen Werte über den ganzen Bereich der ILDM. Es wird deutlich, dass nur wenige Reaktionen sensitiv sind,

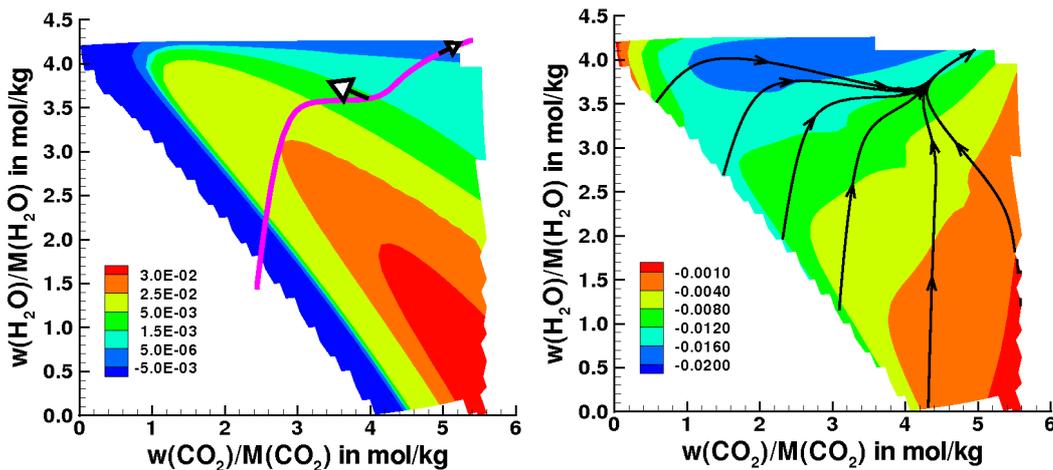


**Abbildung 4.3:** Ergebnisse einer Sensitivitätsanalyse der 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems. Dargestellt ist die relative Sensitivität des OH-Radikals.

ein Verhalten, das vergleichbar ist mit den Resultaten von Sensitivitätsanalysen detaillierter Mechanismen [93], [146]. Das quantitative Verhalten kann aber nicht direkt verglichen werden. Dafür gibt es zwei Gründe: Sensitivitätsanalysen z. B. für Zündvorgänge oder Flammengeschwindigkeiten umfassen nur einen kleinen, speziellen Bereich des Zustandsraumes (beispielsweise den Bereich kleiner Temperaturen bei der Untersuchung von Zündprozessen). Die Sensitivität der ILDM hingegen umfasst einen wesentlich größeren Bereich, nämlich den gesamten Existenzbereich der ILDM. Zweitens wird bei der ILDM-Sensitivitätsanalyse, wie bereits in Kapitel 4.1 dargestellt, lediglich die Komponente der Sensitivität senkrecht zur Mannigfaltigkeit berücksichtigt. Sensitivitäten von Bewegungen auf der

Mannigfaltigkeit werden nicht mit einbezogen, was sich beispielsweise in der relativ niedrigen Sensitivität der Reaktion  $\text{CO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$  äußert. Diese Reaktion ist zwar zu Beginn der Reaktionen geschwindigkeitsbestimmend, hat aber nur wenig Einfluß auf den Gleichgewichtswert des OH.

Für zwei der in Abbildung 4.3 enthaltenen Reaktionen soll nun noch die Veränderung des Sensitivitätswertes in verschiedenen Bereichen der ILDM erörtert werden. Dazu zeigt Abbildung 4.4 Sensitivitäten der stöchiometrischen 2d-ILDM bezüglich des OH-Radikals; der Reaktionsfortschritt ist durch Trajektorien (entsprechend der Lösung eines homogenen Reaktors; magenta in der linken, schwarz in der rechten Abbildung) dargestellt. Auf der linken Seite sind diese Sensitivitäten für die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$  aufgetragen. Diese Reaktion ergibt sich aus der ILDM-Sensitivitätsanalyse als sehr sensitiv (siehe Abbildung 4.3) und spielt zudem zu Beginn des Verbrennungsprozesses eine bedeutende Rolle [146]. Aus der ILDM-Sensitivitätsanalyse ergibt sich mit zunehmendem Reaktionsfort-



**Abbildung 4.4:** 2d-ILDM des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems, projiziert in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene mit den Sensitivitäten bezüglich des OH-Radikals (siehe Legende für die Zuordnung der Farben zu den Sensitivitätswerten; Angaben in mol/kg). Linke Abbildung: Sensitivitäten für die Reaktion  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$ . Zusätzlich sind eine Trajektorie (magenta) und zwei ihrer Sensitivitäten (schwarze Pfeile, skaliert mit einem gemeinsamen Faktor) eingetragen. Rechte Abbildung: Wie links, aber für die Reaktion  $\text{CO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$  angegeben. Die Trajektorien (schwarz) zeigen den Reaktionsfortschritt.

schrift zunächst eine wachsende Sensitivität, die mit zunehmender Entwicklung hin zum Gleichgewicht wieder abnimmt. Dies deckt sich mit der Tatsache, dass

die Reaktion vor allem zu Beginn der Verbrennung von Bedeutung ist, nicht jedoch im Bereich des Gleichgewichtes. Mittels der eingezeichneten Trajektorie soll nun noch der Vergleich zwischen ILDM- und Trajektorien-Sensitivität gezogen werden. Dazu wurde für die Trajektorie an zwei Punkten ebenfalls die Sensitivität ermittelt und eingetragen (schwarze Pfeile; zur besseren Sichtbarkeit wurden die Pfeillängen mit einem gemeinsamen Faktor skaliert). Der Trajektorienpfeil in der Nähe des Gleichgewichtes weist sichtbar lediglich eine Komponente tangential zur Mannigfaltigkeit auf. Da diese Komponenten bei der ILDM-Sensitivitätsanalyse nicht erfasst werden (siehe Kapitel 4.1 und 4.2) und da zudem nach den Ergebnissen aus Kapitel 4.2 die senkrechten Komponenten von Trajektorien- und ILDM-Sensitivität ein vergleichbares Verhalten aufweisen sollten, ist zu erwarten, dass entsprechend der nicht vorhandenen senkrechten Trajektorien sensitivität auch die ILDM-Sensitivität klein ist. Genau das ist auch der Fall. Auch bei der zweiten eingetragenen Trajektorien-Sensitivität, die eine deutliche Komponente weg von der Mannigfaltigkeit beinhaltet, ergibt sich das zu erwartende Resultat: Die ILDM-Sensitivität weist hier einen größeren Wert auf, übereinstimmend mit der auftretenden senkrechten Komponente der Trajektorien sensitivität. Die Ergebnisse bestätigen also die Vergleichbarkeit der Sensitivitäten von ILDMs und der von detaillierten PSRs, wie sie in Kapitel 4.2 hergeleitet wurde.

Auf der rechten Seite der Abbildung 4.4 sind schließlich noch die Sensitivitäten des OH bezüglich der Reaktion  $\text{CO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$  dargestellt. Ausgewählt wurde diese Reaktion, da sich für sie aus der ILDM-Sensitivitätsanalyse hohe Sensitivitäten ergeben (siehe Abbildung 4.3). Dies stimmt mit den Ergebnissen von Sensitivitätsanalysen detaillierter Systeme überein und kann mit der entscheidenden Bedeutung dieser Reaktion für die gesamte Wärmefreisetzung bei der Verbrennung erklärt werden [146]. Die Ergebnisse der ILDM-Sensitivitätsanalyse zeigen eine hohe Sensitivität zu Beginn und eine niedrige Sensitivität gegen Ende des Reaktionsfortschritts. Dies stimmt mit der angesprochenen Bedeutung der Reaktion gut überein.

## 4.4 Zusammenfassung

Die Qualität von ILDMs ist wesentlich abhängig von der Qualität der zugrundeliegenden detaillierten Reaktionsmechanismen. Um den Einfluß eventueller Un-

genauigkeiten im detaillierten Mechanismus (zum Beispiel resultierend aus Messungenauigkeiten bei der Bestimmung kinetischer Daten) abschätzen zu können, muss die Auswirkung von Änderungen kinetischer Daten des detaillierten Mechanismus auf die ILDM quantifiziert werden. Dafür wurde eine Analysemethodik vorgestellt, mit deren Hilfe die Sensitivitäten von ILDMs hinsichtlich kinetischer Daten berechnet werden können. Ergebnisse für das stöchiometrische Synthesegas/Luft-System wurden vorgestellt. Dabei wurde zur Validierung des Algorithmus zunächst gezeigt, dass die Endpunkte der Sensitivitäten und eine mit geänderten kinetischen Daten berechnete ILDM gut übereinstimmen. Die unterschiedlichen Größen und Richtungen der Sensitivität wurden anhand einer 2d-ILDM diskutiert. Mit Hilfe der globalen Sensitivitäten der 2d-ILDM bezüglich des Radikals OH konnten die sensitivsten Reaktionen identifiziert werden; dabei zeigte sich, dass es sich im Wesentlichen um die gleichen Reaktionen handelt, die auch für den detaillierten Mechanismus von entscheidender Bedeutung sind. Diese Erkenntnis ist wichtig für die Vermessung der kinetischen Daten, da Reaktionen mit hoher Sensitivität eine hohe Genauigkeit bei der Messung - also auch einen hohen Messaufwand - erfordern. Handelt es sich bei den sensitiven Reaktionen des detaillierten und des reduzierten Mechanismus um die gleichen Reaktionen, so ist dies natürlich günstig: Es müssen nicht zusätzliche Reaktionen so genau vermessen werden. Für zwei der sensitivsten Reaktionen wurden schließlich die Sensitivitäten und ihre Verteilung über der ILDM genauer untersucht; auch hier ergaben sich Ergebnisse, die mit den Ergebnissen von Sensitivitätsanalysen detaillierter Mechanismen in gutem Einklang stehen.

Der vorgeschlagene Algorithmus, der hinsichtlich der ILDM-Dimension und der Komplexität des detaillierten Mechanismus keiner prinzipiellen Einschränkung unterliegt, erlaubt, den Einfluss von Änderungen beziehungsweise Ungenauigkeiten im detaillierten Mechanismus auf die ILDM abzuschätzen. Dabei kann nicht nur ermittelt werden, welche Reaktionen in Bezug auf die ILDM besonders sensitiv sind, sondern auch, welche Bereiche der ILDM besonders sensitiv reagieren. Grundsätzlich wäre es zudem möglich, mit den ermittelten Sensitivitäten die ILDM eines gestörten Mechanismus zu berechnen. Nicht möglich ist es, aus den Ergebnissen der beschriebenen Analyse Rückschlüsse auf die lokal notwendige Dimension einer ILDM zu ziehen. So kann beispielsweise aus einer niedrigen Sensitivität nicht der Schluß gezogen werden, dass eine ILDM der untersuchten Dimension das detaillierte System mit hoher Genauigkeit wiedergibt. Die notwendige Dimension einer ILDM ist von der Wechselwirkung der chemischen Kinetik

mit den physikalischen Prozessen abhängig und kann damit nicht über eine Sensitivitätsanalyse bezüglich kinetischer Parameter bestimmt werden. Allerdings kann die Methode direkt auf eine Störung der gesamten Kinetik übertragen werden; dann wären auch Aussagen in Bezug auf die notwendige ILDM-Dimension möglich.

# Kapitel 5

## Hierarchische Erweiterung von ILDMs

Im Bereich der langsamen Chemie - bei Flammen entspricht dieser der Vorheizzone - existieren keine niedrigdimensionalen ILDMs mit attraktiven Eigenschaften (siehe Kapitel 3.5.1). Ausschlaggebend dafür ist der in diesem Bereich sehr kleine chemische Quellterm [26] sowie das Fehlen schneller chemischer Prozesse. Führt man Flammenrechnungen auf Basis von ILDMs durch, so muss dieser Bereich natürlich berücksichtigt werden. Umgekehrt stellt sich das Problem, dass zur korrekten Beschreibung der chemischen Dynamik dann sehr hochdimensionale Tabellen verwendet werden müssten, womit das Ziel der möglichst weitgehenden Reduktion verfehlt werden würde. Entsprechend kommt der Entwicklung von Modellen eine große Bedeutung zu, die eine niedrigdimensionale Erweiterung von ILDMs in den Bereich der langsamen Chemie ermöglichen. Ein Ansatz dazu wurde in Kapitel 3.5.1 vorgestellt: Die Berechnung einer Erweiterung in Form lokal linearer Hyperflächen. Diese Vorgehensweise baut darauf auf, dass sich ein System bei Vernachlässigung des chemischen Quellterms und gleichen Diffusivitäten aufgrund der Natur des Diffusionsterms linear verhält [26], [28] und dass sich die stationäre Lösung eines derartigen Systems nahe der Mischungslinie befindet. Dies stellt lediglich eine Näherung an die chemische Dynamik dar. Eine Verbesserung des Modells ist zu erwarten, wenn bei der Konstruktion einer Erweiterung die Eigenschaft einer schrittweisen Relaxation auf Unterräume immer niedrigerer Dimension (diskutiert in Kapitel 3.1) sowie die hierarchische Struktur von ILDMs berücksichtigt wird. Das hier vorgestellte Modell der hierarchisch erwei-

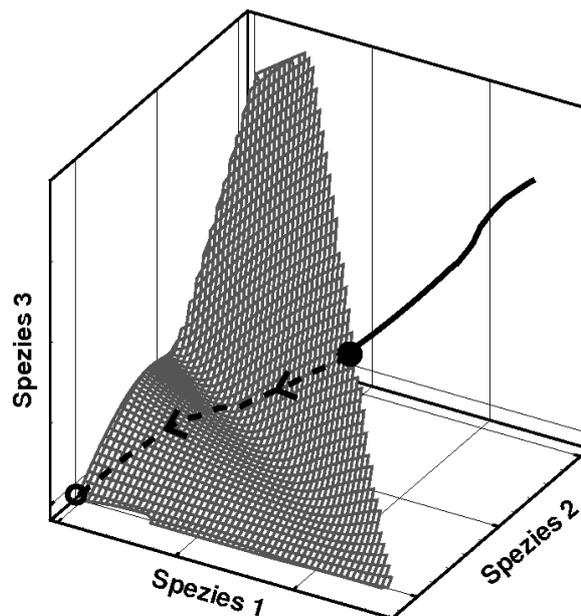
terten ILDMs [72] nutzt diese Struktur, um eine niedrigdimensionale Erweiterung für ILDMs zu konstruieren.

## 5.1 Modell für die hierarchische Erweiterung

Grundlage des Modells der hierarchisch erweiterten ILDMs ist die hierarchische Struktur von ILDMs: Eine eindimensionale ILDM ist immer Teil der entsprechenden zweidimensionalen ILDM und so weiter (siehe Kapitel 3.4). Je höher die Dimension der ILDM, desto größer ist der Bereich des Zustandsraumes, in dem sie existiert und in dem sie das Verhalten des Reaktionssystems richtig wiedergibt. Dies ergibt eine Möglichkeit für die Erweiterung einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM: Die Dimension der ILDM wird schrittweise um  $x = 1, 2, \dots$  erhöht; es werden also mehr und mehr Prozesse als langsam angenommen. Dabei wird  $x$  immer dann erhöht, wenn der Bereich, den eine  $(n_c + x)$ -dimensionale ILDM korrekt beschreiben kann, verlassen wird oder wenn diese ILDM nicht mehr existiert (zur Definition des Randes einer ILDM siehe Kapitel 3.5.1). Eine Erhöhung der Dimension um  $x$  geht mit einer Reduzierung der Anzahl der ILDM-Gleichungen einher, daher müssen - um eine Unterbestimmung des Gleichungssystems zu vermeiden -  $x$  Bedingungen neu eingeführt werden. Diese Bedingungen werden so gewählt, dass sie eine Tabellierung der hierarchisch erweiterten ILDM in der Ausgangsdimension  $n_c$  ermöglichen. Dies bietet erhebliche Vorteile: Die sonst bei Dimensionserhöhungen notwendige, sehr aufwändige Umorganisation des Speichers entfällt und es können - trotz faktischer Verwendung höherdimensionaler ILDMs - Tabellen mit konstant niedriger Dimension für die Implementierung in Flammenrechnungen zur Verfügung gestellt werden. Realisiert wird dies, indem die neu eingeführten Bedingungen fordern, dass sich die Erweiterung auf den höherdimensionalen ILDMs lokal linear auf den Mischungspunkt<sup>16</sup> zubewegt. In Abbildung 5.1 ist dies beispielhaft für eine hierarchische Erweiterung einer 1d-ILDM illustriert. Gezeigt ist eine schematische, dreidimensionale Projektion des Zustandsraumes. Die 1d-ILDM (schwarze Linie) beschreibt die Systemdynamik

<sup>16</sup>Der Mischungspunkt bezeichnet den Zielpunkt der Erweiterung. Bei vorgemischten Flammen ist dies normalerweise die unverbrannte Gemischzusammensetzung. Bei nicht-vorgemischten Flammen werden zwei Mischungspunkte verwendet, die Brennstoff- und die Oxidationsmittelzusammensetzung.

bis zu dem gefüllten schwarzen Kreis; nach diesem soll die ILDM hierarchisch erweitert werden und schließlich den Mischungspunkt (nicht gefüllter Kreis) erreichen. Dazu wird die Anzahl der ILDM-Gleichungen um  $x = 1$  reduziert, die nachfolgend berechneten Punkte sind also Element der 2d-ILDM (graue Fläche), mit der die Systemdynamik länger korrekt wiedergegeben werden kann. Für die Bewegung der Erweiterung auf der 2d-ILDM wird nun zusätzlich lokale Linearität (siehe dazu Kapitel 3.5.1) gefordert. In der Theorie bedeutet dies, dass sich die kürzest mögliche Verbindung zwischen dem letzten 1d-ILDM-Punkt und dem Mischungspunkt ergibt (entsprechend einer geodätischen Linie). Real treten davon allerdings Abweichungen auf, da die Berechnung der hierarchischen Erweiterung numerisch unter Einsatz einer Diskretisierung vorgenommen wird; dies bedeutet, dass durch die lokale Betrachtungsweise Abweichungen von der global betrachteten kürzestmöglichen Verbindung auftreten [23]. Für die Definition der Richtung



**Abbildung 5.1:** Schematische Darstellung der hierarchischen Erweiterung. Die 1d-ILDM (schwarze Linie) wird ab dem Kreis hierarchisch erweitert (gestrichelte Linie) und folgt damit dem Verlauf der 2d-ILDM (graue Fläche).

der hierarchischen Erweiterung der 1d- entlang der 2d-ILDM genügt die Angabe des Richtungsvektors zwischen den beiden zu verbindenden Punkten, also dem letzten ILDM- und dem Mischungspunkt. Aus dem Verfahren resultiert schließlich die gestrichelte Linie entsprechend der hierarchischen Erweiterung der ILDM. Die Tabellierung der gesamten ILDM mit Erweiterung erfolgt in der Ausgangsdi-

mension eins. Wichtig ist weiterhin, dass die hier eingezeichnete 2d-ILDm nicht vollständig berechnet werden muss; sie ist hier lediglich zur Veranschaulichung eingetragen. Tatsächlich berechnet werden nur die Punkte der 2d-ILDm, die zur hierarchischen Erweiterung gehören (Punkte auf der gestrichelten Linie).

Bei der Herleitung des Gleichungssystems für die hierarchische Erweiterung dient das Gleichungssystem zur Bestimmung einer ILDM (siehe Kapitel 3.2.2, Gleichungssystem (3.11)) als Ausgangspunkt:

$$\begin{aligned}\mathbf{G}(\boldsymbol{\psi}) &= \tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0} \\ \tilde{\mathbf{P}}(\boldsymbol{\psi}) &= \mathbf{0}.\end{aligned}\tag{5.1}$$

Dieses Gleichungssystem wird ab dem letzten berechneten ILDM-Punkt durch das Gleichungssystem für die hierarchische Erweiterung ersetzt. Dabei werden die ILDM-Gleichungen wie oben beschrieben schrittweise um  $x$  (bei gleichbleibender Anzahl der Parametrisierungsgleichungen  $\tilde{\mathbf{P}}(\boldsymbol{\psi})$ , siehe dazu Kapitel 3.2.2) reduziert und stattdessen  $x$  Erweiterungsgleichungen  $\mathbf{H}(\boldsymbol{\psi})$  eingeführt, die eine lokal lineare Verbindung des ILDM-Randes mit dem Mischungspunkt fordern:

$$\begin{aligned}\mathbf{G}^*(\boldsymbol{\psi}) &= \tilde{\mathbf{Z}}_f^*(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0} \\ \mathbf{H}(\boldsymbol{\psi}) &= \mathbf{S}(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\boldsymbol{\psi}_{ub} - \boldsymbol{\psi}) = \mathbf{0} \\ \tilde{\mathbf{P}}(\boldsymbol{\psi}) &= \mathbf{0},\end{aligned}\tag{5.2}$$

$\tilde{\mathbf{Z}}_f^*(\boldsymbol{\psi})$  ist dabei der schnelle,  $((n_f - x) \times n)$ -dimensionale invariante Unterraum der Jacobimatrix  $\mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi})$ . Mit der Reduzierung der ILDM-Gleichungen um  $x$  wird angenommen, dass  $x$  mehr Prozesse langsam sind wie bei der zu erweiternden ILDM. Die  $x$  Erweiterungsgleichungen  $\mathbf{H}(\boldsymbol{\psi})$  definieren eine  $(n - x)$ -dimensionale Hyperfläche des Zustandsraumes [23]. Aus der Schnittmenge von  $\mathbf{G}(\boldsymbol{\psi})$  und  $\mathbf{H}(\boldsymbol{\psi})$  resultiert eine  $n_c$ -dimensionale Hyperfläche, die die Punkte der hierarchischen Erweiterung beinhaltet. So kann mit dem Gleichungssystem (5.2) eine  $n_c$ -dimensionale, lokal lineare Erweiterung einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM bestehend aus Punkten von  $(n_c + x)$ -dimensionalen ILDMs berechnet werden. In die Berechnung von  $\mathbf{H}(\boldsymbol{\psi})$  geht die Matrix  $\mathbf{S}(\boldsymbol{\psi})$  ein, deren Reihenvektoren orthogonal sind zu dem  $(n_c + x)$ -dimensionalen langsamen Unterraum [23]. Am letzten

bereits existierenden ILDM- oder Erweiterungspunkt wird  $\mathbf{S}(\boldsymbol{\psi})$  berechnet als<sup>17</sup>:

$$\mathbf{S}(\boldsymbol{\psi}) = \left( \begin{array}{c} \mathbf{P}(\boldsymbol{\psi}) \\ \tilde{\mathbf{Z}}_f^*(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}_\psi(\boldsymbol{\psi}) \end{array} \right)^\perp \cdot (\mathbf{I} - \mathbf{W}(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\mathbf{W}^T(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{W}(\boldsymbol{\psi}))^{-1} \cdot \mathbf{W}^T(\boldsymbol{\psi})). \quad (5.3)$$

Darin ist  $\mathbf{I}$  die  $(n \times n)$ -dimensionale Einheitsmatrix,  $\mathbf{P}(\boldsymbol{\psi})$  die  $(n_c \times n)$ -dimensionale Parametrisierungsmatrix (Details dazu in Kapitel 3.2.2 und in [86]).  $(\tilde{\mathbf{Z}}_f^*(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}_\psi(\boldsymbol{\psi}))$  ist eine  $((n_f - x) \times n)$ -dimensionale Matrix. In der  $(n \times n_c)$ -dimensionalen Matrix  $\mathbf{W}(\boldsymbol{\psi})$  sind die Richtungsvektoren der Erweiterung enthalten. Die Anzahl der benötigten Richtungsvektoren  $n_c$  entspricht dabei der Dimension der ILDM, die erweitert werden soll. Dies bedeutet, dass für die hierarchische Erweiterung einer 1d-ILDM ein Richtungsvektor benötigt wird; er ist gegeben durch die Differenz zwischen den Zustandsvektoren des Mischungspunktes und eines Knotens der Randzelle, an die die Erweiterung anschließen soll:  $\boldsymbol{\psi}_{mix} = (\boldsymbol{\psi}_{KRand} - \boldsymbol{\psi}_{ub})$ . Die Randzelle kann dabei entweder einer Zelle der Ausgangs-ILDM entsprechen oder einer bereits berechneten Erweiterungszelle. Im Falle der hierarchischen Erweiterung einer 2d-ILDM werden zwei Richtungsinformationen benötigt. Zusätzlich zu  $\boldsymbol{\psi}_{mix}$  wird dann ein Zellvektor der betrachteten Randzelle verwendet; bei höherdimensionalen Erweiterungen wären dies zwei und mehr Zellvektoren. Die Zellvektoren  $\boldsymbol{\psi}_{Zell}$  ergeben sich als Differenz zwischen den Zustandsvektoren des Ausgangsknotens  $\boldsymbol{\psi}_{KRand}$  und dessen benachbarten Knoten oder aber aus Linearkombinationen dieser Vektoren. Bei der Auswahl der benötigten Anzahl Vektoren aus den Zellvektoren ist darauf zu achten, dass  $\boldsymbol{\psi}_{mix}$  und  $\boldsymbol{\psi}_{Zell}$  linear unabhängig sein müssen; hier werden jeweils die Zellvektoren gewählt, die mit dem Vektor zum Mischungspunkt einen Winkel nahe  $90^\circ$  einschließen. Der Mischungspunkt geht auch direkt in die Gleichungen  $\mathbf{W}(\boldsymbol{\psi})$  ein. Er ist durch den thermokinetischen Zustandsvektor  $\boldsymbol{\psi}_{ub}$  gegeben; bei vorgemischten Flammen (wie in dieser Arbeit) entspricht dieser Mischungspunkt dem Zustand des unverbrannten Gemisches. Eine Beschränkung hinsichtlich der Wahl des Mischungspunktes gibt es prinzipiell nicht, insbesondere kann auch die Brennstoff- oder Oxidationsmittelzusammensetzung bei der Generierung von ILDM-Tabellen für die Berechnung nicht-vorgemischter Flammen eingesetzt werden.

Die Größe  $x$  spielt bei dem vorgestellten Algorithmus eine wichtige Rolle: Sie definiert die Dimension(en) der ILDM(s) (diese Dimensionen ergeben sich als

<sup>17</sup>Die auftretenden Größen  $\mathbf{S}$ ,  $\mathbf{P}$ ,  $\tilde{\mathbf{Z}}_f^*$ ,  $\mathbf{F}_\psi$  und  $\mathbf{W}$  sind als Funktionen des Zustandes  $\boldsymbol{\psi}$  auch automatisch Funktionen der generalisierten Koordinaten  $\boldsymbol{\theta}$ ; auf die Darstellung dieser Funktionalität in den Gleichungen wird aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet.

$(n_c + x)$ ), auf der/denen die Punkte der Erweiterung liegen sollen. Dies entspricht der Festlegung, wieviele Prozesse bei der Erweiterung zusätzlich als langsam betrachtet werden. Mit  $x$  wird damit die Anpassung der hierarchischen Erweiterung an die chemische Dynamik realisiert. Die Anzahl der Stufen von  $x$  kann innerhalb des beschriebenen Algorithmus beliebig gewählt werden. Für den Grenzfall, dass nur eine Erweiterungsstufe  $x = n_f$  gewählt wird, geht das vorgestellte Konzept der hierarchischen Erweiterung in den lokal linearen Ansatz (siehe Kapitel 3.5.1; [26], [28]) über. Der andere Grenzfall wäre das Ausnutzen aller möglichen Stufen  $x = 1, \dots, n_f$ . Es sei an dieser Stelle erwähnt, dass an der Grenze einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM die Existenz der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM sichergestellt ist. Eine Ausnahme davon bildet der Fall, dass der  $(n_c + 1)$  langsamste Eigenwert degeneriert ist; dann existiert jedoch die  $(n_c + 2)$ -dimensionale ILDM. Wichtig ist bei der Wahl der Stufen natürlich die Frage, an welcher Stelle der  $x$ -Wert hochgesetzt wird. Dabei sind unterschiedliche Verfahren denkbar: Zum einen kommen dafür Zeitskalenanalysen detaillierter Flammenrechnungen in Frage (diese werden im Kapitel 5.2 eingesetzt), zum anderen wäre auch der Einsatz einer Online-Fehlerkontrolle denkbar (Referenzen dazu werden in der Zusammenfassung, Kapitel 5.3, gegeben). In dieser Arbeit werden maximal drei Stufen der Erweiterung verwendet; dabei wird jeweils ein Teil der Erweiterung mit der Stufe  $x = n_f$  berechnet, womit in den kalten Bereichen der Flammen vereinfachend auf die Linearisierung des Systemverhaltens durch Mischungsprozesse (siehe Kapitel 3.5.1) zurückgegriffen wird.

Zur numerischen Lösung des Gleichungssystems (5.2) für die Erweiterung wird das bereits in Kapitel 3.3 beschriebene mehrdimensionale Fortsetzungsverfahren eingesetzt. Damit sind hinsichtlich des Lösungsverfahrens keine Änderungen oder Erweiterungen gegenüber der Berechnung der ILDM selbst erforderlich. Zudem stellt das mehrdimensionale Fortsetzungsverfahren sicher, dass die Bewegung entlang der höherdimensionalen ILDMs auch bei hoher lokaler Krümmung der ILDMs möglich ist. Die fertige ILDM-Tabelle mit hierarchischer Erweiterung wird wie in Kapitel 3.5 beschrieben in Flammenrechnungen implementiert, auch hier ist keine Änderung erforderlich.

Abschließend seien zur Vereinfachung der Nomenklatur noch folgende Begriffe definiert: Eine einstufig erweiterte ILDM ist eine ILDM, an die eine Erweiterung mit einer Stufe  $x = n_f$  angebaut wird; dies entspricht der rein lokal linearen Verlängerung (gemäß Kapitel 3.5.1). Bei einer zweistufig erweiterten ILDM besteht die Erweiterung aus zwei Stufen, einer Stufe mit  $x = 1$  und einer zweiten Stufe

mit  $x = n_f$ . Die Erweiterung einer dreistufig erweiterten ILDM besteht aus den Stufen  $x = 1$ ,  $x = 2$  und  $x = n_f$ .

## 5.2 Ergebnisse von Flammenrechnungen mit hierarchisch erweiterten ILDMs

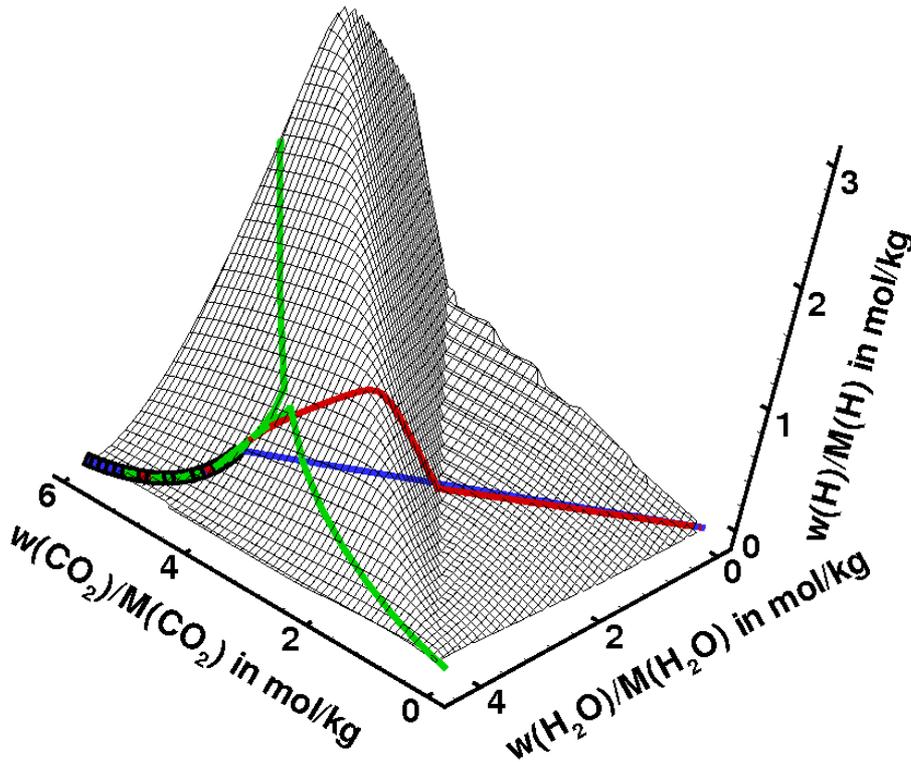
Verschiedene Rechnungen mit hierarchisch erweiterten ILDMs wurden durchgeführt, um das Konzept zu validieren. Ausgewählt wurden dazu zwei Systeme. Zum einen das stöchiometrische Synthesegas/Luft-System ( $x_{\text{CO}} = 0,150$ ,  $x_{\text{O}_2} = 0,131$ ,  $x_{\text{H}_2} = 0,112$ ,  $x_{\text{N}_2} = 0,606$ ; Synthesegas-Zusammensetzung: CO 40 Vol.%, H<sub>2</sub> 30 Vol.%, N<sub>2</sub> 30 Vol.%;  $H = -6,475 \cdot 10^5$  J entsprechend einer Temperatur im Unverbrannten von 298 K), dessen detaillierter Mechanismus aus 13 Spezies besteht, die in 67 Elementarreaktionen miteinander reagieren [84]. Das Synthesegas/Luft-System ist ein relativ einfaches System, bietet aber diverse Vorteile, siehe dazu Kapitel 4.3. Weiterhin wurde das komplexere, stöchiometrische Methan/Luft-System ( $x_{\text{CH}_4} = 0,055$ ,  $x_{\text{O}_2} = 0,110$ ,  $x_{\text{N}_2} = 0,835$ ,  $H = -2,577 \cdot 10^5$  J entsprechend einer Temperatur im Unverbrannten von 298 K) untersucht. Hier reagieren 34 Spezies in 151 Elementarreaktionen, NO-Chemie wurde nicht berücksichtigt [31]. Für die Generierung der ILDMs wurde HOMREA [84] eingesetzt, die Flammenrechnungen wurden als eindimensionale Simulationen mit dem Programmpaket INSFLA [83], [91] durchgeführt<sup>18</sup>. Simuliert wurden freie, vorgemischte Flammen in einem laminaren Strömungsfeld. Zwar stellen diese Flammen einen relativ einfachen Fall dar, sie sind jedoch für Analysezwecke hervorragend geeignet: Eindimensionale Simulationen sind gut graphisch aufbereitbar, was durch die glatten Verläufe von Flammenprofilen bei laminarem Strömungsfeld unterstützt wird. Vorgemischte Flammen bieten außerdem den Vorteil einer höheren Sensitivität bei der Verwendung unterschiedlicher Reaktionsmechanismen; bei den vorwiegend diffusionskontrollierten nicht-vorgemischten Flammen [146] ist dies nicht so ausgeprägt. Die Rechnungen wurden für ein adiabates, isobares System durchgeführt; vereinfachend wurde mit Lewis-Zahl  $Le = 1$  und gleichen Diffusivitäten gerechnet. Damit bleiben im System Druck, Enthalpie und Elementzusammensetzung

<sup>18</sup>Die eindimensionalen Erhaltungsgleichungen sind Standard und werden an dieser Stelle nicht diskutiert, siehe dazu [146], [147]. Im Kapitel 7.2 werden sie für den Fall von Gegenstromflammen angegeben.

konstant [84]. Am linken Rand wurden für die Gemischzusammensetzung und die Enthalpie (beziehungsweise Temperatur) des unverbrannten Gemisches sogenannte Dirichlet-Randbedingungen (feste Werte) vorgegeben, am rechten Rand wurden Neumann-Randbedingungen (verschwindende Gradienten) gesetzt.

### 5.2.1 Synthesegas/Luft-System

Um zunächst die Idee der hierarchischen Erweiterung zu veranschaulichen, sind in Abbildung 5.2 verschiedene 1d- und eine 2d-ILD des stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Systems dargestellt. Die 2d-ILD (schwarzes Gitter) ist einstufig

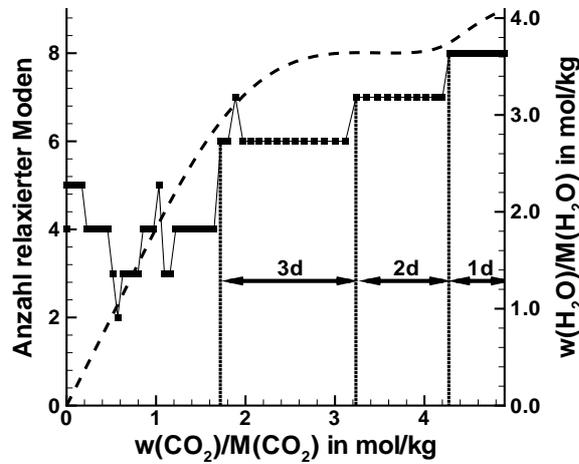


**Abbildung 5.2:** Vergleich verschiedener ILDMs des stöchiometrischen Synthesegas/-Luft-Systems. 1d-ILDs (schwarz und grün) ohne Erweiterung, einstufig erweiterte 1d-ILD (blau), zweistufig erweiterte ILDM (rot) und einstufig erweiterte 2d-ILD (schwarzes Gitter).

erweitert, hat also - dem in Kapitel 3.5.1 vorgestellten Konzept entsprechend - eine lokal lineare Erweiterung. Bei der Berechnung der 1d-ILD ergeben sich aus dem ILDM-Gleichungssystem (3.11) zwei Lösungen (grüne Linien). Diese wandern ab

einem bestimmten Punkt in entgegengesetzten Richtungen auf der 2d-ILDm entlang. Da sich beide Zweige seitwärts und damit weg vom Mischungspunkt (hier entsprechend dem unverbrannten Punkt) bewegen, sind sie für die Generierung einer hierarchisch erweiterten ILDM-Tabelle für Flammenrechnungen nicht geeignet und die Berechnung einer zu erweiternden 1d-ILDm wird an dem Punkt abgebrochen, an dem sich die beiden Lösungszweige voneinander wegbewegen (schwarze Linie). Ausgehend von diesem Punkt wurden zwei verschiedene Erweiterungen berechnet: Eine einstufige Erweiterung entsprechend dem lokal linearen Konzept (blaue Linie) und eine zweistufige Erweiterung (rote Linie). Der Vergleich zeigt, dass sich die einstufig erweiterte ILDM von Beginn an deutlich von der 2d-ILDm entfernt bewegt, während sich die Punkte der zweistufig erweiterten ILDM innerhalb der 2d-ILDm befinden. Damit gibt die zweistufig erweiterte ILDM die Systemdynamik länger korrekt wieder, nämlich in dem Bereich, der von einer 2d-ILDm korrekt beschrieben wird. Sowohl die zweistufig erweiterte 1d- als auch die 2d-ILDm wurden ab dem Ende des 2d-Bereichs lokal linear erweitert; damit wird der Linearisierung der Systemdynamik durch Mischungsprozesse Rechnung getragen.

Auf Basis der hierarchisch erweiterten ILDMs wurden Rechnungen freier, stöchiometrischer, vorgemischter Synthesegas/Luft-Flammen durchgeführt. Vor der Generierung der hierarchisch erweiterten ILDMs muss über die Anzahl der Stufen der Erweiterung sowie den Beginn (Zustand, bei dem  $x$  geändert wird) der jeweiligen Stufen entschieden werden, um eine optimale Anpassung an die Systemdynamik zu gewährleisten. Eingesetzt wurde dazu eine Zeitskalenanalyse der stationären Lösung der detaillierten Flammenrechnung. Diese Methodik im Rahmen von ILDM wurde in [122] eingeführt und wird im Kapitel 7.4 ausführlich diskutiert; an dieser Stelle sei nur auf die hier interessierenden Resultate eingegangen, siehe Abbildung 5.3. Dargestellt ist die Anzahl der relaxierten Moden entsprechend der Anzahl von Prozessen, die lokal vom System entkoppelt werden können; als Maß für den Reaktionsfortschritt ist zudem die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  aufgetragen. Maximal können beim Synthesegas/Luft-System neun Moden relaxiert sein (Anzahl Spezies + Druck + Enthalpie abzüglich der Erhaltungsprozesse), entsprechend einer 0d-ILDm. Aus der Zeitskalenanalyse ergibt sich, dass ein großer Bereich der Flamme mit ILDMs der Dimensionen eins, zwei und drei beschrieben

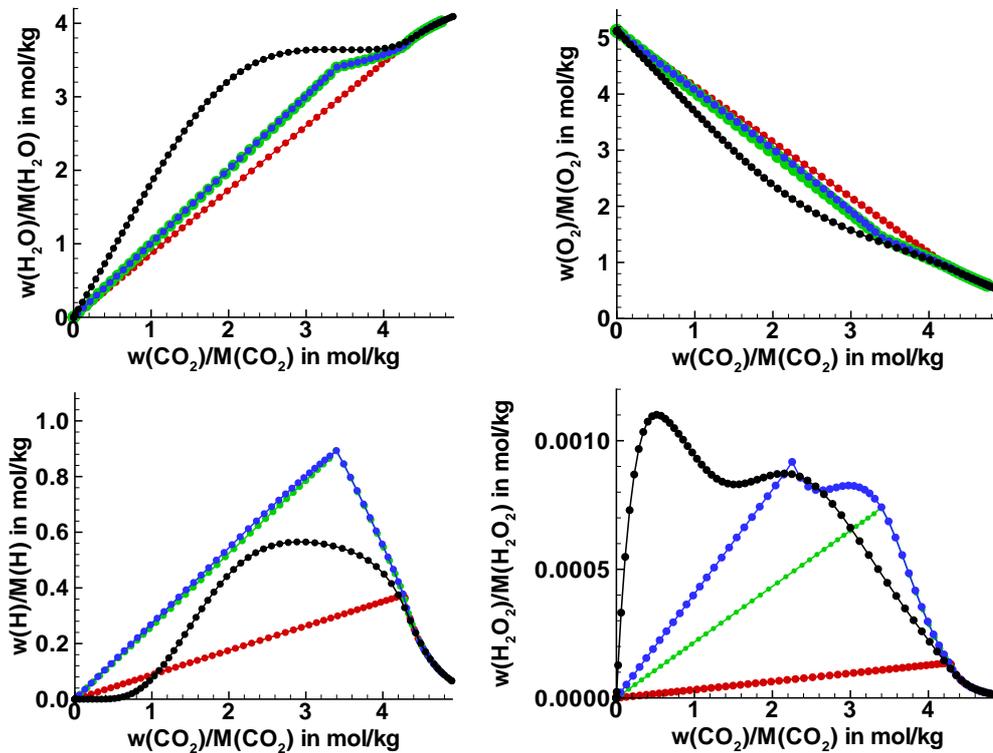


**Abbildung 5.3:** Relaxierte Moden (durchgezogene Linie mit gefüllten Symbolen) in einer freien stöchiometrischen Synthesegas/Luft-Flamme und Verlauf der Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  (gestrichelte Linie); detaillierte Rechnung. Eingezeichnet sind die Bereiche, in denen 1d-, 2d- und 3d-ILDMs zur Beschreibung des Systems innerhalb einer Fehlertoleranz von 5% ausreichen.

werden kann<sup>19</sup>. Diese Dimensionen werden nun für die hierarchische Erweiterung eingesetzt; es ergeben sich einstufig, zweistufig und dreistufig erweiterte ILDMs. Der nicht hierarchisch erweiterte Teil dieser ILDMs wurde mit dem lokal linearen Konzept erstellt (zur Begründung lokaler Linearität im Bereich der langsamen Chemie siehe Kapitel 3.5.1). Erste Flammenrechnungen freier, vorgemischter Flammen wurden auf Basis von derart hierarchisch erweiterten 1d-ILDMs durchgeführt. Auf eine detaillierte Diskussion der 1d-Ergebnisse wird verzichtet, da aus früheren Ergebnissen bekannt ist, dass mit 1d-ILDMs nur in einem sehr kleinen Bereich des Zustandsraumes gute Ergebnisse erzielt werden können (siehe zum Beispiel [84]). Es sei hier nur kurz gezeigt, wie sich verschiedene hierarchische 1d-ILDMs auf die stationären Lösungen<sup>20</sup> der Flammenrechnungen auswirken. Dazu sind in Abbildung 5.4 zweidimensionale Projektionen des Zustandsraumes für drei unterschiedlich erweiterte 1d-ILDMs (rot: Einstufig, grün: Zweistufig, blau: Dreistufig) zusammen mit der stationären, detaillierten Lösung (schwarz) dargestellt. Zunächst ist festzustellen, dass die reduzierten Lösungen weit von der

<sup>19</sup>Bei der Berechnung der relaxierten Moden wurde für alle Spezies ein maximaler Fehler von  $\epsilon = 5\%$  gegenüber der detaillierten Lösung zugelassen, siehe dazu Kapitel 7.4.

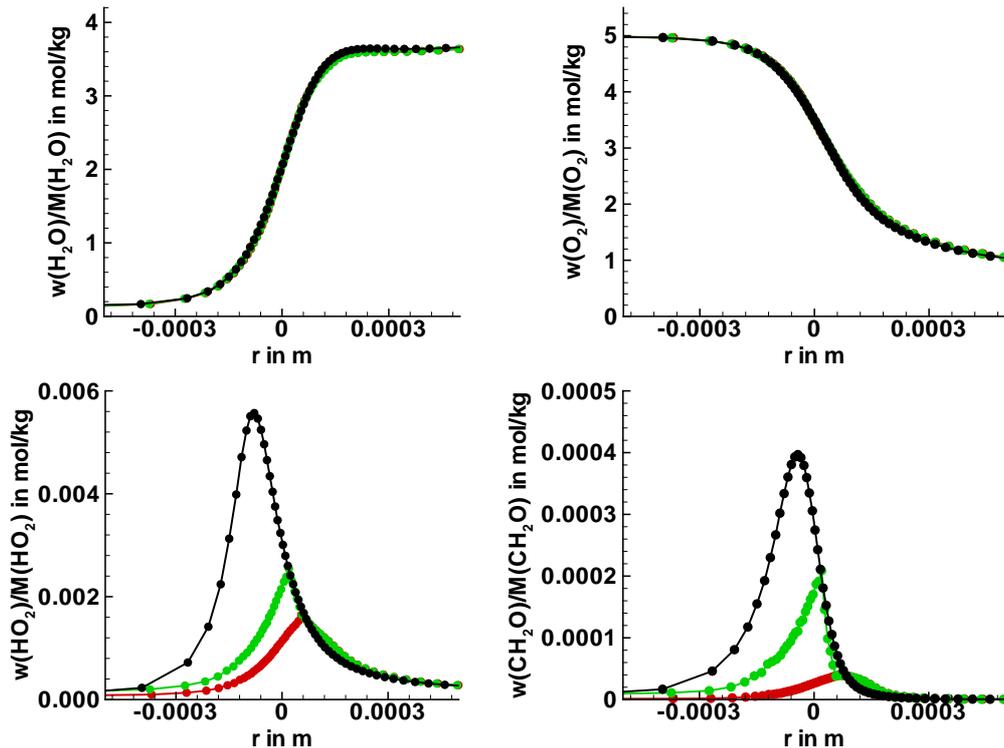
<sup>20</sup>Darunter wird die Lösung der Flammenrechnung nach  $10^4$  s verstanden.



**Abbildung 5.4:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Reduzierte Lösungen basierend auf einstufig (rot), zweistufig (grün) und dreistufig (blau) hierarchisch erweiterten 1d-ILDMS. Detaillierte Lösung (schwarz).

detaillierten Lösung entfernt liegen; lediglich im Bereich des Gleichgewichts werden gute Ergebnisse für alle Spezies erzielt - wie bereits aufgrund des Einsatzes von 1d-ILDMS erwartet. Für die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  ergibt sich für die einstufig erweiterte ILDM (entsprechend dem lokal linearen Ansatz) die größte Abweichung zur detaillierten Lösung, während mit den mehrstufig erweiterten ILDMs eine deutliche Verbesserung erzielt werden kann. Dabei ist bei den mehrstufig erweiterten ILDMs insbesondere beim  $\text{H}_2\text{O}_2$  ein deutlicher Unterschied zwischen der zwei- und dreistufig erweiterten ILDM zu sehen; nur mit der dreistufig erweiterten ILDM wird das detaillierte Profil mit zwei lokalen Maxima erfasst. Bei der Spezies  $\text{H}$  bieten die mehrstufig erweiterten ILDMs lediglich den Vorteil, dass sie die Lage des Maximums besser erfassen. Insgesamt wird aber aus diesem kurzen Überblick deutlich, dass selbst bei 1d-ILDMS die mehrstufige hierarchische Erweiterung das Potential einer besseren Erfassung der Dynamik bietet.

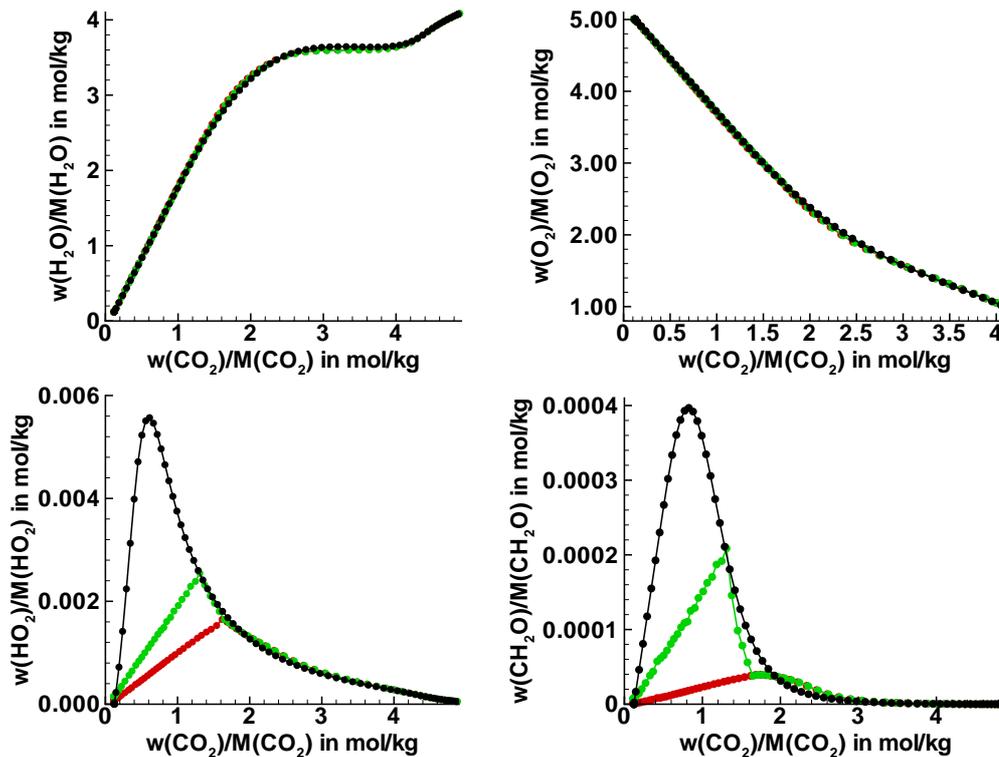
Nach dieser kurzen Diskussion der mit hierarchisch erweiterten 1d-ILDMs erhaltenen Ergebnisse sei nun ausführlicher auf hierarchisch erweiterte 2d-ILDMs eingegangen. Dazu zeigt Abbildung 5.5 zunächst das Verhalten einiger Spezies im Ortsraum; jeweils dargestellt ist die stationäre Lösung mit einer einstufig (rot) beziehungsweise zweistufig erweiterten ILDM (grün) sowie mit dem detaillierten Mechanismus. Da sich das Ortsprofil bei freien Flammen ohne äußere Zwänge



**Abbildung 5.5:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMs, dargestellt für verschiedene Spezies über der Ortskoordinate. Rot: Lösung basierend auf einer einstufig erweiterten 2d-ILDM ( $x = n_f$ ). Grün: Lösung basierend auf einer zweistufig erweiterten ILDM ( $x = 1, x = n_f$ ). Schwarz: Detaillierte Lösung.

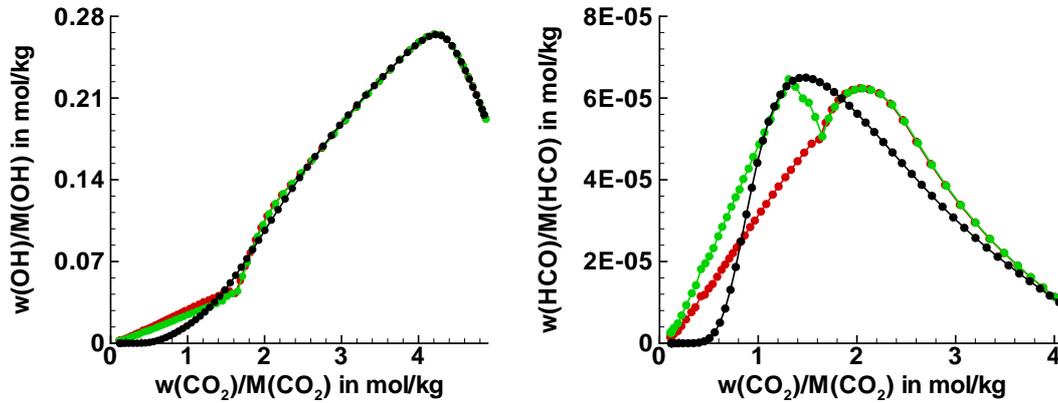
einstellt, können sich bei der Lösung mit unterschiedlichen ILDMs Verschiebungen im Ortsraum ergeben. Da diese für den Vergleich der Resultate ohne Bedeutung sind, wurde für die Abbildung eine Normierung des Ortes durchgeführt: Der Nullpunkt des Ortes wurde an die Stelle gelegt, an der der  $\text{H}_2\text{O}$ -Wert den Wert  $(\text{H}_2\text{O}_{\max}/2)$  erreicht. Für die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{O}_2$  ist über den gesamten Ortsraum nur ein minimaler Unterschied in den Ergebnissen zu erkennen. Dabei

ergibt die zweistufig erweiterte ILDM ein geringfügig besseres Resultat wie die einstufig erweiterte. Deutlicher wird der Unterschied für die reaktiven Spezies  $\text{HO}_2$  und  $\text{CH}_2\text{O}$ : Hier werden mit der zweistufig erweiterten ILDM im gesamten Ortsraum deutlich bessere Resultate erzielt wie mit der einstufig erweiterten ILDM (deren Verlängerung der lokal linearen Erweiterung entspricht). Sowohl die Lage der Maxima der einzelnen Spezies, als auch deren Größe wird mit der zweistufigen Erweiterung besser abgebildet. Dieses Bild bestätigt sich bei Betrachtung der Ergebnisse in Projektionen des Zustandsraumes, siehe Abbildung 5.6. Aufgetragen wurden die Spezies nun über der Spezies  $\text{CO}_2$ . Auch hier zeigt sich zwar für die stabilen Spezies nur ein sehr geringer Unterschied (allerdings auch hier in Richtung besserer Ergebnisse für die zweistufige Erweiterung), jedoch ein großer für die reaktiven Spezies. Abbildung 5.7 zeigt schließlich noch die Spezies OH



**Abbildung 5.6:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMS, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Farben wie in Abbildung 5.5.

und HCO, ebenfalls in einer zweidimensionalen Projektion des Zustandsraumes.

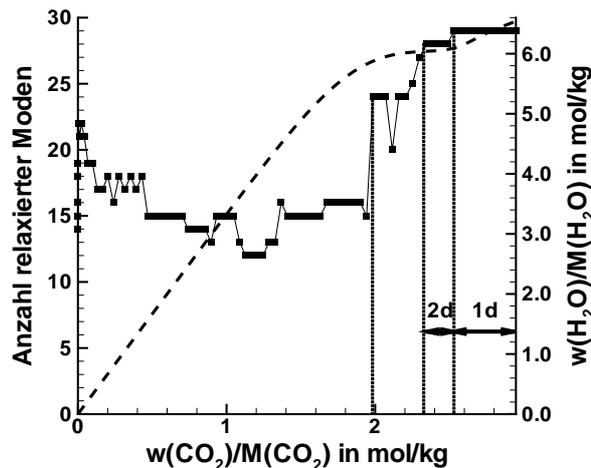


**Abbildung 5.7:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Synthesegas/Luft-Flamme mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten 2d-ILDMS, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Farben wie in Abbildung 5.5.

Hier ergibt sich für die zweistufig erweiterte ILDM nur eine geringe Verbesserung gegenüber der rein lokal linear erweiterten ILDM. Die zweistufige Erweiterung bewirkt bei der Spezies HCO einen erneuten Anstieg ab dem Beginn der zweiten Erweiterungsstufe, so dass hier ein Bereich des Profils besser angenähert wird, jedoch scheint in diesem Fall die mehrstufige hierarchische Erweiterung nicht unbedingt notwendig zu sein. Es sei noch erwähnt, dass diese Resultate auf andere, nicht dargestellte Spezies übertragen werden können; so ist das Verhalten des OH im Bezug auf die hierarchisch erweiterten ILDMs mit dem des O und H vergleichbar, das von HCO mit dem des  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Zusammengefasst kann aus den für das Synthesegas/Luft-System durchgeführten Rechnungen gefolgert werden, dass die hierarchisch erweiterten ILDMs die Möglichkeit geben, die Dynamik eines Systems bei der Erweiterung einer ILDM länger korrekt zu erfassen. Dies führt zur Verbesserung der mit diesen ILDMs erzielten Flammenresultate im Vergleich zum Einsatz rein lokal linear (einstufig) erweiterter ILDMs und kann damit begründet werden, dass im Rahmen der Erweiterung mehr langsame Prozesse berücksichtigt werden. Der Grad der Verbesserung ist je nach Spezies unterschiedlich; so ergibt sich für die stabile Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  nur eine geringe, für reaktive Spezies eine deutlichere Verbesserung.

### 5.2.2 Methan/Luft-System

Verschiedene hierarchisch erweiterte ILDMs wurden auch für Flammenrechnungen mit dem stöchiometrischen Methan/Luft-System angewendet. Dieses System ist durch eine höhere Anzahl an Spezies und Elementarreaktionen deutlich komplexer als das zuvor betrachtete Synthesegas/Luft-System. Zwar ist nach der hierarchischen Struktur der Verbrennungsmechanismen aliphatischer Kohlenwasserstoffe der Mechanismus der Synthesegas-Oxidation im Mechanismus der Methan-Oxidation enthalten [146], was vergleichbare Resultate vermuten lässt. Zu klären ist jedoch die Frage, wie sich die zusätzlichen Reaktionen auf die Anwendung der hierarchisch erweiterten ILDMs auswirken. Berechnet wurden wieder freie, vorgemischte Flammen mit unterschiedlichen hierarchisch erweiterten ILDMs. Zur Steuerung der einzelnen Erweiterungsstufen der hierarchisch erweiterten ILDMs wurde wieder von einer Zeitskalenanalyse ausgegangen, siehe Abbildung 5.8. Aus



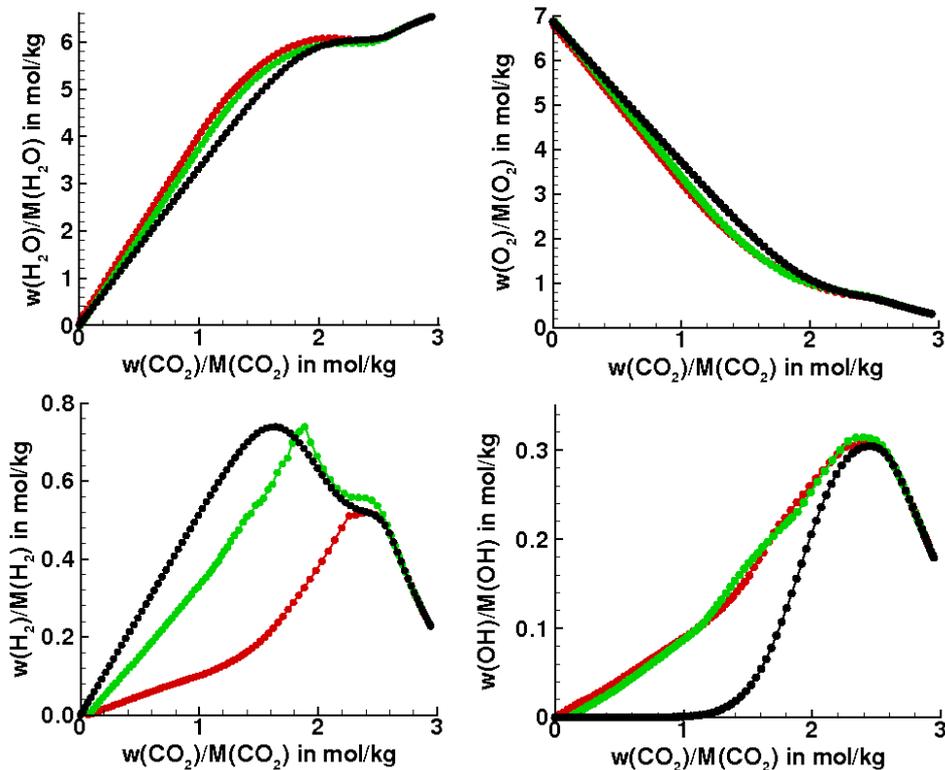
**Abbildung 5.8:** Relaxierte Moden (durchgezogene Linie mit gefüllten Symbolen) in einer freien stöchiometrischen Methan/Luft-Flamme und Verlauf der Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  (gestrichelte Linie); detaillierte Rechnung. Eingetragen sind die Bereiche, in denen 1d- und 2d-ILDMS zur Beschreibung des Systems innerhalb einer Fehlertoleranz von 5% ausreichen. Der nicht bezeichnete Bereich links des 2d-Bereiches entspricht dem Bereich, in dem 3d-ILDMS verwendet wurden.

der Analyse ergibt sich für die 3d-ILDM nur ein sehr kleiner Bereich, indem die geforderte Genauigkeit erfüllt wird. Aufgrund von früheren Berechnungen (siehe zum Beispiel [3], [4], [28]) scheint es jedoch gerechtfertigt, diesen Bereich größer

zu wählen. Für die hierarchische Erweiterung wurde daher der Bereich so vergrößert, dass er die Dimensionen 4 bis 6 mit einschließt.

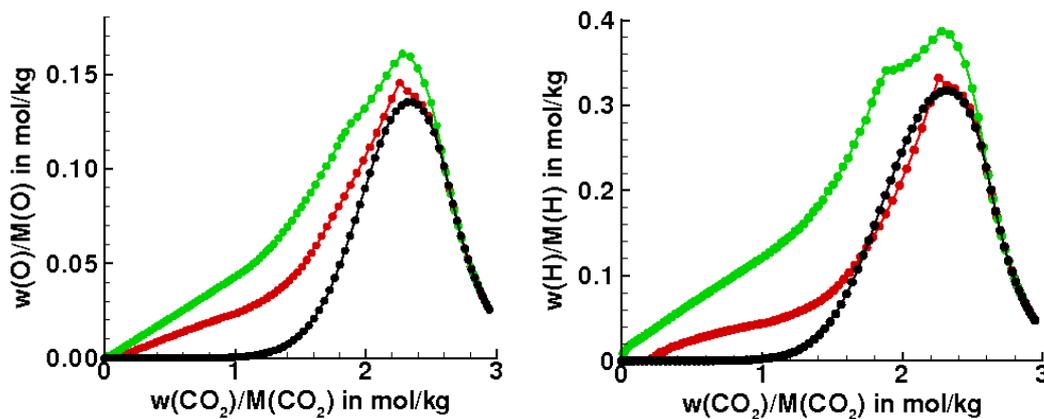
Zunächst wurden die Flammenrechnungen für das Methan/Luft-System unter Verwendung hierarchisch erweiterter 1d-ILDMS durchgeführt. Diese ergaben zwar eine deutliche Verbesserung gegenüber dem bisher verwendeten Modell der lokal linearen Erweiterung, dennoch muss klar festgehalten werden, dass 1d-ILDMS im Vergleich zur Verwendung des detaillierten Mechanismus eine zu geringe Genauigkeit erzielen. Die Ergebnisse werden daher nicht weiter diskutiert.

Detailliert vorgestellt werden sollen die Ergebnisse, die sich bei Anwendung der hierarchischen Erweiterung auf 2d-ILDMS des Methan/Luft-Systems und die damit durchgeführten Flammenrechnungen ergaben; Abbildung 5.9 zeigt deren stationäre Lösungen im Zustandsraum im Vergleich zur detaillierten Lösung (schwarz). Die grüne, zweistufig erweiterte ILDM liefert für die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$ ,



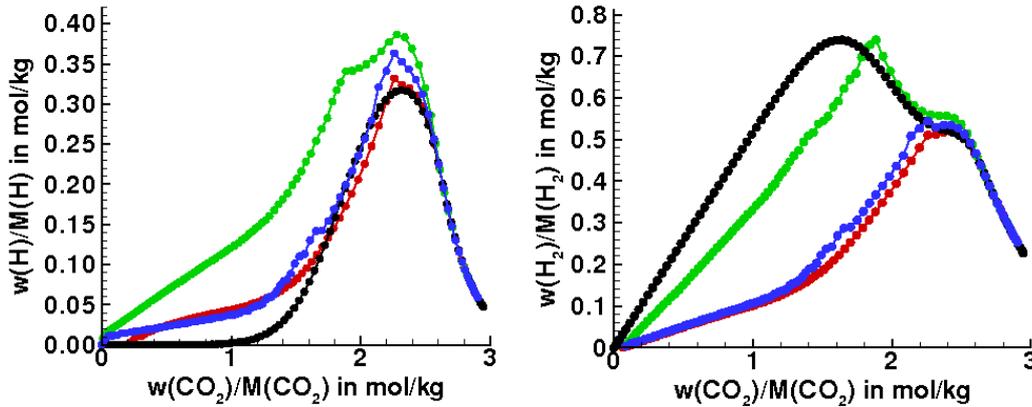
**Abbildung 5.9:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Methan/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Rot: Lösung für eine einstufig erweiterte 2d-ILDM. Grün: Lösung für eine zweistufig erweiterte 2d-ILDM. Schwarz: Detaillierte Lösung.

$O_2$  und  $H_2$  das bessere Resultat als die einstufig erweiterte ILDM. Insbesondere bei der Spezies  $H_2$  ist der Unterschied sehr deutlich erkennbar; hier ist nur die zweistufig erweiterte ILDM in der Lage, auch die Form des Speziesverlaufs mit zwei Maxima richtig wiederzugeben. Bei der Spezies  $OH$  gibt es Bereiche, in denen die einstufig erweiterte ILDM das bessere Ergebnis liefert (zwischen  $w_{CO_2}/M_{CO_2} \approx 2, 2 \dots 2, 6$  mol/kg und  $\approx 1, 15 \dots 1, 66$  mol/kg). Für die Spezies  $O$  und  $H$  ergibt sich sogar eine deutlich bessere Übereinstimmung des mit der rein linear erweiterten ILDM berechneten Ergebnisses mit der detaillierten Lösung, siehe Abbildung 5.10. Dies kann für alle die Spezies festgestellt werden, deren (allei-



**Abbildung 5.10:** Stationäre Lösungen von Berechnungen einer stöchiometrischen freien Methan/Luft-Flamme, dargestellt in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes. Rot: Lösung für eine einstufig erweiterte 2d-ILD. Grün: Lösung für eine zweistufig erweiterte 2d-ILD. Schwarz: Detaillierte Lösung.

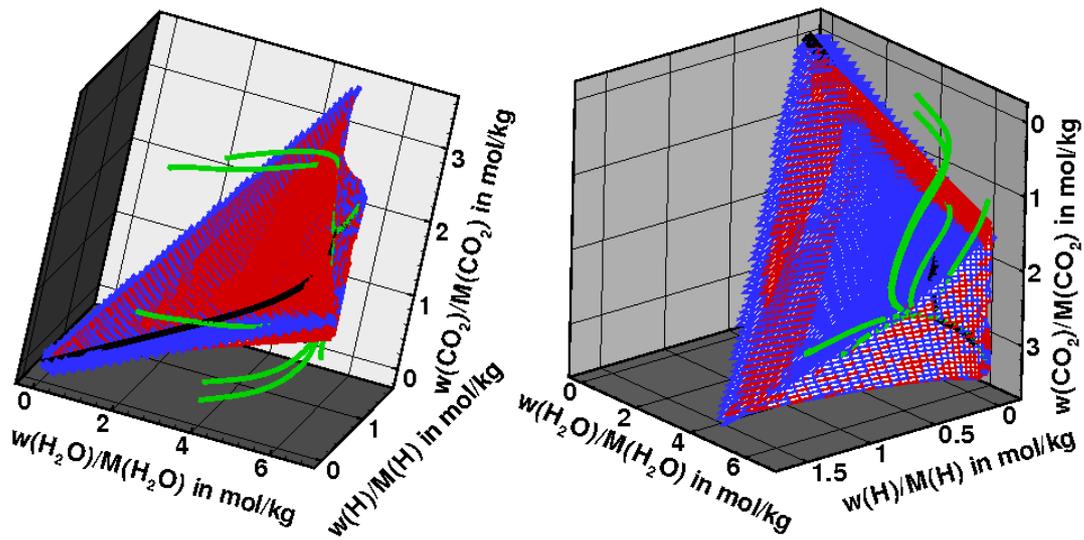
niges) Maximum in dem Bereich von  $w_{CO_2}/M_{CO_2}$ -Werten  $> 2,0$  mol/kg liegt. Vergleicht man nun nochmals die Ergebnisse der Zeitskalenanalyse, mit deren Hilfe die Grenzen der einzelnen  $x$ -Schritte festgelegt wurden (Abbildung 5.8), so stellt man fest, dass genau in diesem Bereich die Zeitskalenanalyse eine Erhöhung der notwendigen Dimension von 3 angab. Um die hierarchische Erweiterung mit  $x = 1$  in einem großen Bereich anwenden zu können, wurde hier auf frühere Ergebnisse zurückgegriffen und der 3d-Bereich (entsprechend  $x = 1$ ) bis zum Bereich 6d ausgedehnt (siehe oben). Diese Annahme musste nun überprüft werden; daher zeigt Abbildung 5.11 zusätzlich in Blau das Resultat für eine hierarchische Erweiterung, deren ( $x = 1$ )-Bereich nur so weit berechnet wurde, wie laut Zeitskalenanalyse die Verwendung einer 3d-ILD möglich ist. Dargestellt ist auf der linken Seite die Spezies  $H$ . Für sie ergab sich mit der zweistufig hierarchisch erwei-



**Abbildung 5.11:** Wie Abbildung 5.9, wobei in Blau zusätzlich die stationäre Lösung einer Flammenrechnung mit verkürztem ( $x = 1$ )-Anteil eingetragen ist.

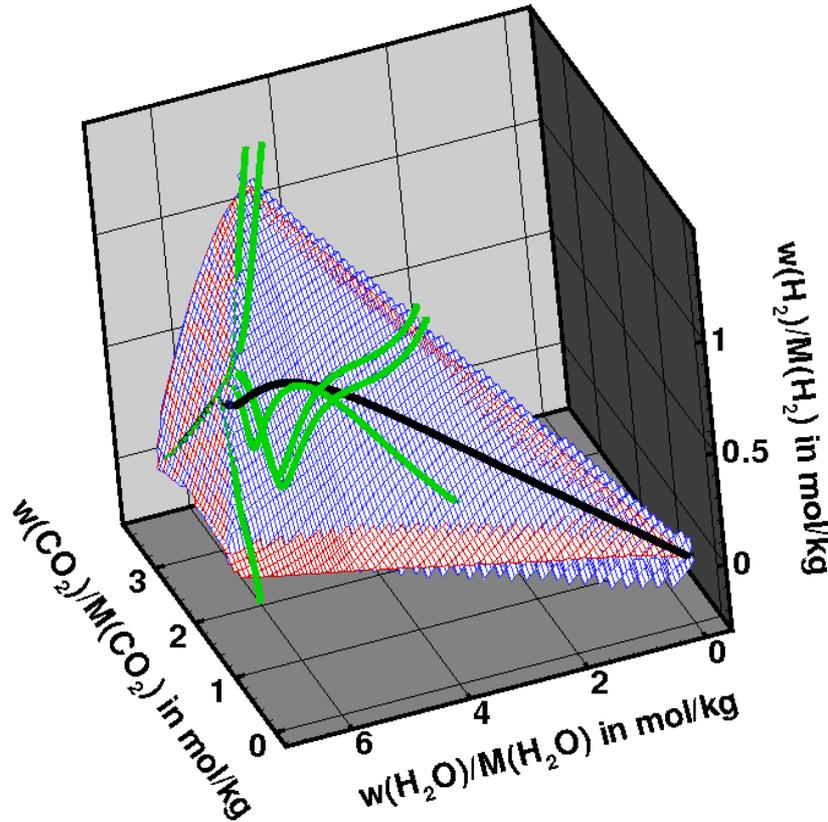
terten ILDM mit langem ( $x = 1$ )-Bereich ein schlechteres Ergebnis (dargestellt in Grün) als mit der einstufig erweiterten ILDM (dargestellt in Rot). Betrachtet man nun das Ergebnis, das sich mit der ebenfalls zweistufig erweiterten ILDM mit gekürztem 3d-Bereich ergibt, so zeigt sich eine deutliche Verbesserung des Resultats. Nach wie vor liefert die einstufig erweiterte ILDM jedoch in einigen Bereichen ein besseres Resultat (insbesondere zwischen  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} \approx 2, 20$  und  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} \approx 2, 50$  mol/kg). Für die rechts dargestellte Spezies  $\text{H}_2$  ist zudem eine Verschlechterung des Resultats gegenüber der zweistufig erweiterten ILDM mit langem ( $x = 1$ )-Anteil festzustellen; allerdings ist das Resultat dennoch besser als bei der einstufig erweiterten ILDM.

Zur Erklärung der an einigen Stellen und für einige Spezies wie H und O besseren Ergebnisse der rein lokal linearen Erweiterung sei ein Vergleich der entsprechenden ILDMs, der Lösung des detaillierten Systems und einiger Trajektorien des Methan/Luft-Systems herangezogen, den Abbildung 5.12 zeigt. Für die Spezies H ergab sich bei den Flammenrechnungen bei Verwendung der einstufig erweiterten ILDM eine teilweise bessere Übereinstimmung mit dem detaillierten Resultat wie bei den mehrstufig erweiterten ILDMs. In der Abbildung ist die einstufig erweiterte ILDM wieder in Rot dargestellt, die zweistufig erweiterte ILDM in Blau. Zusätzlich ist die stationäre Lösung des Systems in Schwarz eingetragen sowie Trajektorien homogener, isobarer und adiabatischer Reaktoren für unterschiedliche Anfangszustände (siehe auch in Kapitel 3.1) in Grün. Die Trajektorien zeigen dabei die Dynamik des chemischen Systems ohne Einfluß physikalischer Prozesse, während die Lösung des detaillierten Systems unter dem Einfluß sowohl chemi-



**Abbildung 5.12:** Dreidimensionale Projektion des Zustandsraumes in die Koordinaten  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}$ . Rot: 2d-ILDm mit einstufiger Erweiterung. Blau: Zweistufig erweiterte 2d-ILDm. Schwarz: Stationäre, detaillierte Lösung. Grün: Trajektorien des stöchiometrischen Methan/Luft-Systems für verschiedene Anfangszustände.

scher als auch physikalischer Prozesse zustande kommt. Vergleicht man nun die Bewegung der Trajektorien, so ist zu erkennen, dass sich die detaillierte Lösung und die Trajektorien in dem Bereich, in dem die 1d-ILDm verlassen wird, auf unterschiedlichen Seiten befinden. Die detaillierte Lösung liegt näher bei der roten, einstufig erweiterten ILDM und wird entsprechend durch diese auch besser angenähert. Dagegen befinden sich die Trajektorien unmittelbar nach Verlassen der 1d-ILDm auf der blauen, zweistufig erweiterten ILDM. Dies bedeutet, dass zwar die reine chemische Dynamik durch die zweistufig erweiterte ILDM besser beschrieben wird, dass aber die physikalischen Prozesse je nach Spezies zu einer Linearisierung führen. Da die einstufig erweiterte ILDM lokal linear erweitert ist, kann sie diese Linearisierung besser wiedergeben. Dies gilt für diejenigen Minoritätenspezies, deren Maximum vor oder im Bereich des Beginns der ( $x = 1$ )-Erweiterung liegen. Für die Spezies  $\text{H}_2$ , bei der sich eine bessere Beschreibung durch die zweistufig erweiterte ILDM ergab, ergibt eine entsprechende Betrachtung, siehe Abbildung 5.13, genau das andere Bild: Hier befindet sich die detaillierte Lösung auf der Seite der zweistufig erweiterten ILDM, ebenso wie die Trajektorien, so dass hier die Dynamik des Systems mit der zweistufig erweiterten ILDM besser erfasst wird.



**Abbildung 5.13:** Dreidimensionale Projektion des Zustandsraumes in die Koordinaten  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$ . Farben wie in Abbildung 5.12.

### 5.3 Zusammenfassung

Basierend auf der hierarchischen Struktur von ILDMs (siehe Kapitel 3.4 und dort genannte Referenzen) sowie auf einem Ansatz zur lokal linearen Erweiterung von ILDMs (Kapitel 3.5.1 und dort genannte Referenzen) wurde eine neue Strategie zur Erweiterung von ILDMs in den Bereich der langsamen Chemie vorgestellt, die hierarchisch erweiterten ILDMs. Dabei wird die Anzahl der ILDM-Gleichungen schrittweise reduziert (entsprechend einer Erhöhung der ILDM-Dimension) und die gleiche Anzahl anderer Bedingungen stattdessen eingeführt. Diese Bedingungen bewirken eine Ausrichtung der Erweiterung hin zum Mischungspunkt; dabei wird eine Näherung an die geodätische (im Sinne der kürzestmöglichen) Verbindung zwischen ILDM-Rand und Mischungspunkt berechnet. Zudem ermöglichen die Bedingungen trotz der faktischen Erhöhung der ILDM-Dimension die Tabellierung der erweiterten ILDM in der Ausgangsdimension. Damit können

eine umfangreiche Neuorganisation des Speichers und eine Änderung der Implementierung der ILDM-Tabellen in Flammenrechnungen (die auf eine konstante Dimension ausgerichtet sind, siehe Diskussion im Kapitel 3.5) unterbleiben. Die Anzahl der Stufen der hierarchischen Erweiterung kann beliebig gewählt werden. Das Konzept wurde auf das stöchiometrische Synthesegas/Luft- und das stöchiometrische Methan/Luft-System angewandt. Mit unterschiedlich erweiterten ILDMs wurden jeweils Simulationen freier, vorgemischter Flammen durchgeführt und die Ergebnisse mit der detaillierten Lösung und mit der reduzierten Lösung basierend auf dem bisher eingesetzten Konzept einer lokal linearen Verlängerung [28] verglichen. Dabei zeigte sich, dass die mehrstufige hierarchische Erweiterung die Qualität der reduzierten Resultate deutlich verbessert. Ausnahmen davon sind beim Methan/Luft-System die Spezies H und O. Diese werden im Bereich der langsamen Chemie durch die physikalischen Prozesse soweit beeinflusst und linearisiert, dass eine rein lokal lineare Erweiterung ihre Dynamik besser beschreibt, also die einstufig erweiterte ILDM. Dies zeigt die große Bedeutung der Steuerung der einzelnen Stufen der hierarchischen Erweiterung. Die Anpassung dieser Stufen kann automatisiert ablaufen: Es werden Grenzen für die einzelnen Bereiche der Erweiterung definiert, bei deren Erreichen eine Änderung von  $x$ , also eine Anpassung des Gleichungssystems für die Erweiterung erfolgt. Zur Festlegung dieser Grenzen können Ergebnisse von Zeitskalenanalysen eingesetzt werden. Wichtig ist dabei die Definition der Fehlergrenzen bei der Zeitskalenanalyse (siehe [122] und Kapitel 7.4), die an das jeweilige Problem angepasst erfolgen muss. Eine weitere Möglichkeit der Steuerung der hierarchischen Erweiterung sowie ein Schritt zu einer weiteren Automatisierung wäre mit dem Einsatz einer Online-Fehlerkontrolle<sup>21</sup> gegeben, die bei Erreichen bestimmter Fehlerkriterien den nächsten Schritt der Erweiterung einleitet.

Die hierarchisch erweiterten ILDMs bieten neben der besseren Erfassung der chemischen Dynamik einen weiteren Vorteil: Da die Punkte der hierarchischen Erweiterung (genauer: des Teils mit  $x = 1$ ) einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM bereits Elemente der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM sind, bilden sie eine optimale Ausgangsbasis für die hierarchische Generierung einer  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM (siehe [96] und Kapitel 3.4). Durch die erhöhte Anzahl an Startpunkten tragen die hierarchisch erweiterten ILDMs zur Stabilität und Effizienz des Algorithmus

<sup>21</sup>Für Methoden der *a posteriori* Fehlerkontrolle siehe zum Beispiel [5], [6], [7], [8], [19], [20], [104], [105], [106] und die darin referenzierte Literatur.

der hierarchischen Generierung bei.

# Kapitel 6

## On-Demand Generierung von ILDMs

In Kapitel 3 wurde neben dem mathematischen Modell sowie der numerischen Berechnung von ILDMs auch die bisher übliche Implementierung in Form vorab generierter Tabellen mit fixer Dimension vorgestellt, die dem Code zur Flammenrechnung als Bibliothek zur Verfügung gestellt werden.<sup>22</sup> Eine solche Implementierung mit vorab generierten Tabellen weist diverse Nachteile auf:

- Da in den meisten Fällen kein *a priori* Wissen über die während der Flammenrechnung erreichten Zustände vorhanden ist bzw. dieses nicht verwendet werden soll, wird die Tabelle für den gesamten Existenzbereich der ILDM und ihrer Erweiterung erzeugt<sup>23</sup>. Damit ist der tabellierte Bereich jedoch weitaus größer als der Teil des Zustandsraumes, der während einer Flammenrechnung tatsächlich erreicht wird. Da für jeden Zustand nicht nur die Spezies, sondern auch weitere Werte tabelliert werden (siehe die Terme für Gleichung (3.20) in Kapitel 3.5.3), stellt diese zu umfangreiche Tabellierung eine unnötige Belegung von Speicherplatz dar; zudem wird für die Generierung der nicht benötigten Zustände in der Tabelle sowie für das Einlesen der zu großen Tabelle unnötig viel Rechenzeit in Anspruch genommen.

---

<sup>22</sup>Mit solchen vorab generierten Tabellen wurden bereits diverse Flammenrechnungen für verschiedene Flammentypen durchgeführt, siehe zum Beispiel [3], [4], [47], [49], [51], [52], [80], [91], [92], [101], [103], [117], [122], [124], [125], [128], [148], [149], [152].

<sup>23</sup>Zur Definition des Existenzbereichs siehe die Angaben in Kapitel 3.6.

- Die vorab generierte ILDM-Tabelle wird für eine fixe Dimension erzeugt, die vor der eigentlichen Flammenrechnung bestimmt werden muss. Eine lokale Anpassung der Tabellen-Dimension während der Flammenrechnung ist nicht möglich, was eine optimale Abstimmung der Dimension auf lokale Verhältnisse in der Flamme verhindert.
- Für den Benutzer beinhaltet das Verfahren der bisherigen Implementierung die Schwierigkeit, dass mehrere Arbeitsschritte und die Kenntnis von zwei Programmen notwendig sind: Die ILDM-Tabelle muss zunächst erzeugt werden, daran schließt sich die separat durchzuführende Flammenrechnung an. Zudem ist hinsichtlich der vorab zu wählenden Dimension und einer eventuellen Begrenzung des tabellierten Bereichs ein nicht geringes Vorwissen seitens des Benutzers notwendig.
- Es gibt keine Fehlerkontrolle.

Der erste Punkt, nämlich zu großen Speicherplatz- und Rechenzeitbedarf zu vermeiden, ist bei der Simulation reaktiver Strömungen extrem wichtig; deshalb wurde diesen Problemen auch bereits viel Aufmerksamkeit zuteil. Es wurden zahlreiche Verfahren zur Erhöhung der Effizienz von Simulationen entwickelt; genannt seien beispielhaft ISAT (In-Situ Adaptive Tabulation, [111]), PRISM (Piecewise Reusable Implementation of the Solution Mapping, [135]), repro-modelling with orthonormal polynomials ([33], [22]), künstliche neuronale Netze (artificial neural networks, [10]) und HDMR (High-Dimensional Model Representations, [78]). Diese Verfahren können grundsätzlich mit beliebigen Mechanismen eingesetzt werden; es handelt sich jedoch ausschließlich um sogenannte „storage-and-retrieval“-Verfahren, die sich nur mit der Speicherorganisation und der Suche von bestimmten Elementen in diesem Speicher befassen, nicht jedoch mit einer Reduktion der Systemdynamik. In [36], [102] wurde ein erster Ansatz für eine in-situ Erzeugung von ILDM-Tabellen durch eine Kopplung eines Tabellierungsprogrammes und der Flammenrechnung untersucht und damit die prinzipielle Möglichkeit der Erzeugung eines reduzierten Mechanismus im Rahmen seiner Anwendung aufgezeigt. Dabei wurden ILDM-Tabellen eingesetzt, die in Abhängigkeit von wenigen Spezies tabelliert waren. Im Gebiet der langsamen Chemie wurden die Reaktionsraten vereinfachend auf Null gesetzt.

In dieser Arbeit wird ein Algorithmus vorgestellt [72], der alle oben genannten Problembereiche bisheriger Implementierungen behebt, indem die ILDM-Tabel-

len nicht mehr vorab, sondern on-demand während einer Flammenrechnung (Berechnung einer reaktiven Strömung) erzeugt werden. Dabei werden hocheffiziente Verfahren eingesetzt (hierarchische Generierung, siehe Kapitel 3.4, und hierarchische Erweiterung, siehe Kapitel 5). Die ILDMs werden in generalisierten Koordinaten (siehe Kapitel 3.5.2) tabelliert. Flammenrechnungen basierend auf ILDMs unterschiedlicher Dimension und eine anschließende Fehlerkontrolle sind - ohne zusätzlichen Eingriff seitens des Benutzers - möglich. Umgesetzt wurden die Algorithmen innerhalb eines neuen Programmpakets, für das die bereits vorhandenen Programme HOMREA [84] zur Generierung von ILDMs und INSFLA [83], [91] zur eindimensionalen Berechnung instationärer reaktiver Strömungen als Basis verwendet wurden.

## 6.1 Algorithmus für die on-demand Generierung von ILDMs

Der neue Algorithmus ist vereinfacht in Abbildung 6.1 dargestellt. Während bisher der Flammenrechnung eine komplette, vorab generierte ILDM-Tabelle übergeben wurde (siehe Implementierungsschema 3.3 im Kapitel 3.5.3), wird jetzt nur noch eine kleine Start-Tabelle vor der Flammenrechnung erzeugt.<sup>24</sup> Zu Beginn der Flammenrechnung wird ein Startprofil in detaillierten Koordinaten in Form einer linearen Verbindung von unverbranntem und verbranntem Gemisch erzeugt; durch Interpolation in der Start-ILDM-Tabelle wird es in die generalisierten Koordinaten überführt. Der Flammencode löst dann die Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und die generalisierten Koordinaten, wie dies bereits beim bisherigen Implementierungsschema (siehe Kapitel 3.5) der Fall war. Am Ende jedes Rechenschrittes wird eine Interpolation der benötigten Werte aus der ILDM-Tabelle vorgenommen. Im Gegensatz zum bisherigen Verfahren sind die angeforderten Werte (bis auf einige wenige, die für das Startprofil und die ersten Rechenschritte benötigt werden) noch nicht in der Tabelle enthalten. Sie werden erst bei Bedarf - on-demand - erzeugt. Dazu wird der folgende Algorithmus eingesetzt (in der Abbildung als Kästchen „On-demand-Erweiterung der Tabelle“ zusammengefasst):

<sup>24</sup>Dieser Schritt kann der Flammenrechnung auch direkt vorgeschaltet werden, ohne dass ein separater Programmcode notwendig ist

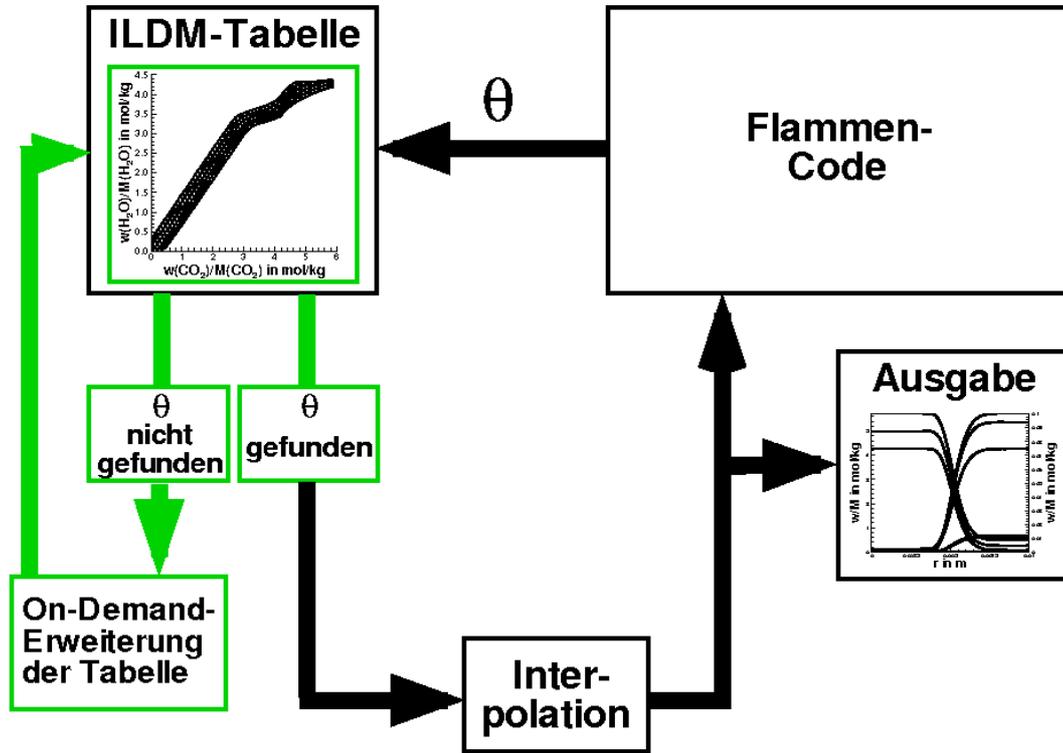


Abbildung 6.1: Implementierungsschema zur on-demand Generierung von ILDMs.

- 1: Umsetzen der vom Flammencode angeforderten generalisierten Koordinaten in Knotenkoordinaten der neu zu erzeugenden ILDM-Zelle.
- 2: Durchsuchen der Tabelle nach bereits vorhandenen Nachbarzellen für die neu zu generierende Zelle.
- 3: Überprüfen, ob sich die neue Zelle im ILDM- oder im Erweiterungsbereich befindet.
- 4: Generieren der neuen Zelle entweder nach den ILDM- oder den Erweiterungsgleichungen (Gleichungssysteme (3.13) beziehungsweise (3.16)). Dabei wird auf das bekannte mehrdimensionale Fortsetzungsverfahren (Kapitel 3.3) zurückgegriffen.
- 5: Überprüfen, ob sich durch die neu berechneten Knoten ungeschlossene, aber vollständige Zellen ergeben haben. Wenn ja, werden diese Zellen geschlossen.

- 6: Überprüfen der Konvexität des tabellierten Bereichs (eine Diskussion der Konvexität im Zusammenhang mit ILDMs findet sich in [87]). Wenn notwendig, werden zum Erreichen eines konvexen Tabellierungsbereichs weitere Zellen angebaut.
- 7: Berechnen der für Gleichung (3.20) benötigten Terme (Transportmatrix, Projektionsmatrix, reduzierte Quellterme).
- 8: Fortsetzen der Flammenrechnung mit der vergrößerten Tabelle.

Nach Rückgabe der erweiterten Tabelle werden dieser die notwendigen Daten für Interpolation und Ausgabe entnommen. Danach erfolgt der nächste Integrations-schritt (Lösen der Erhaltungsgleichungen), gegebenenfalls ein weiterer Zellenanbau on-demand und so weiter, bis die Lösung der Flammenrechnung erreicht ist. Nach Beendigung der Flammenrechnung liegt die ILDM-Tabelle in einer optimal an die Berechnung angepassten Form vor. Mit Ausnahme einiger Startzellen sind nur noch Zellen tabelliert, die tatsächlich während der Rechnung zum Einsatz kommen. Dadurch kann sowohl die Rechenzeit für die Generierung der ILDM-Tabelle als auch der von dieser eingenommene Speicherplatz deutlich reduziert werden (siehe Kapitel 6.2). Weiteres Einsparpotential im Hinblick auf den Speicherplatz würde eine Entfernung der Zellen aus der Tabelle bieten, die bereits von der Flammenrechnung verwendet wurden.

Der vorgestellte Algorithmus stellt die optimale Anpassung des tabellierten Bereichs des Zustandsraumes an die Flammenrechnung sicher. Jedoch wurden bisher zwei weitere Entwicklungspotentiale nicht umgesetzt: Die Änderung der Dimension der ILDM-Tabelle sowie die Fehlerkontrolle. Dafür soll der Algorithmus nun erweitert werden. Die bisher fixe und nicht veränderbare Dimension der ILDM-Tabellen führte zu dem Zwang, die Dimension vor der Flammenrechnung festlegen zu müssen. Dies erfordert Erfahrung beim Anwender und führt gegebenenfalls zur Auswahl einer nicht optimalen Dimension; wünschenswert ist daher eine Dimensionsanpassung während der Anwendung der ILDM-Tabellen. Dies ist grundsätzlich auf zwei verschiedenen Wegen realisierbar: Entweder wird die Dimension der gesamten Tabelle verändert oder es wird nur eine lokale Dimensionsänderung für den gerade untersuchten Zustand vorgenommen. Diese letztgenannte Variante einer voll adaptiven Tabellendimension würde sicherlich bei reduzierten Berechnungen die besten Ergebnisse im Vergleich zur detaillierten Lösung liefern, da die Anpassung jeweils am momentan untersuchten Gitterpunkt lokal erfolgen könnte.

Eine solche Implementierung ist grundsätzlich möglich; dabei ist der Einsatz einer Online-Fehlerkontrolle<sup>25</sup> zur Bestimmung der lokal notwendigen Dimension denkbar. Allerdings wäre eine solche Implementierung mit komplizierten Algorithmen und großem Aufwand etwa hinsichtlich der Speicherorganisation verbunden. Daher ist die erste Variante, die Möglichkeit der Anpassung der Dimension der Gesamttabelle, als geeignetere Lösung anzusehen. Ein solcher Algorithmus wurde für diese Arbeit entwickelt. Dabei wird zunächst eine Flammenrechnung mit einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM-Tabelle durchgeführt. Auf diese Rechnung folgt eine Dimensionserhöhung der Tabelle auf  $(n_c + 1)$  unter Ausnutzung der hierarchischen Struktur von ILDMs (siehe Kapitel 3.4). Schließlich folgt eine Neuberechnung des Ergebnisses der Flammenrechnung unter Nutzung der höherdimensionalen Tabelle und eine Fehlerberechnung. Im Einzelnen besteht der Algorithmus aus folgenden Schritten im Anschluss an die erste Flammenrechnung:

- A: Entfernen der  $(x = n_f)$ -Erweiterung (siehe Kapitel 5.1) aus der  $n_c$ -dimensionalen Tabelle, da für die Erweiterung bisher nicht untersucht wurde, ob hierarchische Konzepte (siehe Kapitel 3.4) angewandt werden können.
- B: Hierarchisches Generieren der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen ILDM nur für einen kleinen Bereich (einige Zellreihen) und Hinzufügen der  $(x = n_f)$ -Erweiterung zu der neuen ILDM.
- C: Berechnen der Terme für Gleichung (3.20).
- D: Zweite Flammenrechnung mit der  $(n_c + 1)$ -dimensionalen Tabelle; Verwendung der Lösung der ersten Flammenrechnung als Startlösung, um eine schnellere Konvergenz zu erreichen.
- E: Generieren weiterer ILDM-Zellen on-demand entsprechend der Schritte (1-8), wenn notwendig.
- F: Berechnen der relativen Änderung zwischen den stationären Lösungen der beiden Flammenrechnungen zur Abschätzung der Auswirkung der Dimensionserhöhung.

<sup>25</sup>Siehe zum Beispiel [5], [6], [7], [8], [19], [20], [104], [105], [106] und dort genannte Referenzen.

Die relative Änderung gemäß Schritt (F) ergibt sich aus:

$$\epsilon_{rel,i} = \frac{|\psi_i^{n_c+1} - \psi_i^{n_c}|}{\max(\alpha, |\psi_i^{n_c+1}|)}; \quad (6.1)$$

dabei ist  $\psi_i^{n_c+1}$  die Lösung der zweiten Flammenrechnung basierend auf der  $(n_c+1)$ -dimensionalen ILDM-Tabelle. Entsprechend ist  $\psi_i^{n_c}$  die Lösung der ersten Flammenrechnung basierend auf der  $n_c$ -dimensionalen Tabelle.  $\alpha$  ist ein Schwellenwert, der 0 im Nenner vermeidet. Die Abweichung  $\epsilon_{rel,i}$  wird in jedem Punkt der Flammenrechnung ermittelt und zeigt damit orts aufgelöst die Auswirkungen der Dimensionserhöhung. Dabei ist darauf zu achten, dass bei der Flammenrechnung die Lage der Gitterpunkte ständig angepasst wird [83], was zu Abweichungen in den Gittern der ersten und zweiten Flammenrechnung führen kann. In diesem Fall ist eine vor der Fehlerberechnung durchzuführende Projektion der Ergebnisse beider Rechnungen auf das gleiche Gitter notwendig. Weiterhin sei erwähnt, dass der Vorgang der Dimensionserhöhung, der erneuten Flammenrechnung und der Fehlerabschätzung nach der zweiten Flammenrechnung beliebig oft wiederholt werden kann.

Der vorgestellte Algorithmus mit den Schritten (A-F) erlaubt die automatisierte Berechnung eines Flammenresultates basierend auf ILDM-Tabellen unterschiedlicher Dimension ohne zusätzliche Arbeitsschritte seitens des Benutzers sowie ohne weitere Schnittstellen und ist unabhängig vom betrachteten Flammentyp. Dies ist ein Schritt in Richtung der Optimierung der Tabellendimension ohne *a priori* Wissen hinsichtlich des Verhaltens der Flamme. Im Hinblick auf die Dimension der ILDM-Tabellen unterliegt das Verfahren keiner prinzipiellen Einschränkung. Ebenso ist das Verfahren nicht an den Einsatz in Programmen zur Flammenrechnung gebunden; die Algorithmen können ohne prinzipielle Änderung in beliebige Codes zur Strömungsberechnung implementiert werden (beispielsweise ist ein Einsatz bei Berechnungen mit Atmosphärenchemie oder bei CVD-Prozessen (Chemical Vapour Deposition, [3]) denkbar).

## 6.2 Ergebnisse

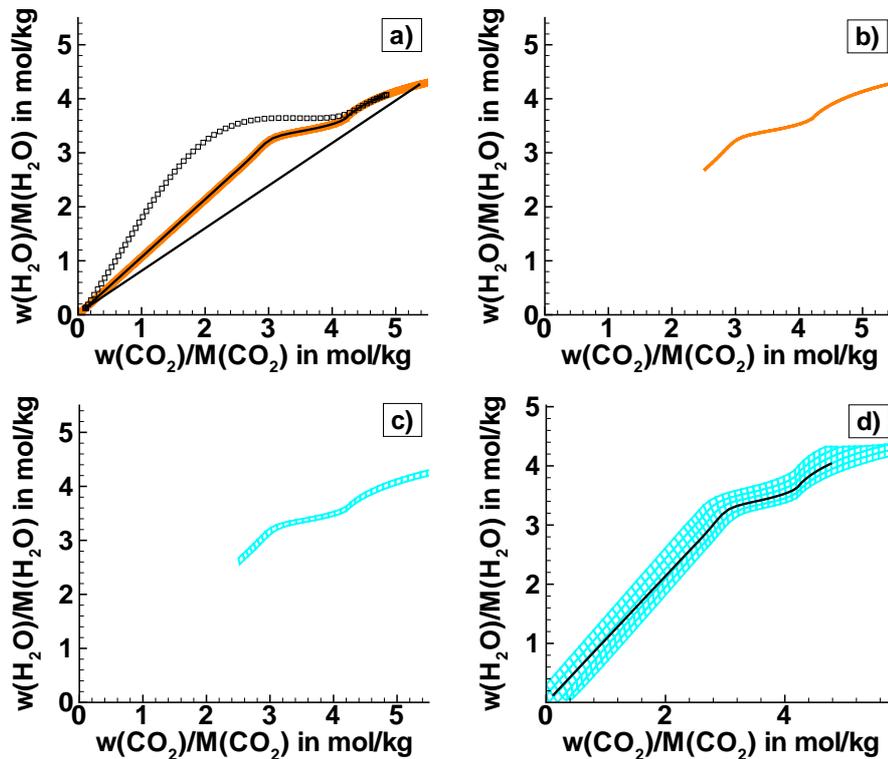
Der on-demand-Algorithmus für die Erzeugung von ILDMs wurde beispielhaft für die Berechnung einer freien Synthesegas/Luft-Flamme mit stöchiometrischer Gemischzusammensetzung eingesetzt. Diese Rechnung soll dazu dienen, die ein-

zelenen Schritte des Algorithmus mit den Schritten (1-8) und (A-F) zu veranschaulichen. Die Rechnung wurde mit dem neu geschaffenen Programmpaket, aufbauend aus den bereits bestehenden Programmen HOMREA [84] und INSFLA [83], [91], durchgeführt. Die Simulation erfolgt in einer Raumdimension und in einem laminaren Strömungsfeld. Das betrachtete System ist adiabatisch und isobar ( $p=1$  bar); es wurde ein vereinfachtes Transportmodell mit gleichen Diffusivitäten und einer Lewis-Zahl  $Le=1$  verwendet<sup>26</sup>. Am unverbrannten Rand kamen Dirichlet-Randbedingungen für Temperatur und Spezies-Massenbrüche zum Einsatz, am verbrannten Rand Neumann-Randbedingungen. Entsprechend der am unverbrannten Rand vorausgesetzten Temperatur von 298 K wurden die im Laufe der Rechnungen on-demand generierten ILDMs für eine Enthalpie von  $-6,475 \cdot 10^5$  J berechnet.

In Abbildung 6.2 ist der Ablauf des Algorithmus beginnend mit der ersten Flammenrechnung (durchgeführt auf Basis einer zweistufig hierarchisch erweiterten 1d-ILDm; zur hierarchischen Erweiterung siehe Kapitel 5) sowie die nachfolgende hierarchische Generierung einer zweidimensionalen ILDM gezeigt. Gewählt wurde eine Darstellung in zweidimensionalen Projektionen des Zustandsraumes in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene. In Teil a) der Abbildung ist in Orange die zweistufig erweiterte 1d-ILDm dargestellt, in Schwarz das Anfangsprofil und die stationäre Lösung<sup>27</sup> der mit dieser ILDM durchgeführten ersten Flammenrechnung. Das Startprofil als lineare Verbindung zwischen unverbranntem und verbranntem Zustand wird in detaillierten Koordinaten erzeugt und dann auf die reduzierten Koordinaten projiziert. Anschließend wird die Rechnung durchgeführt, bis die stationäre Lösung erreicht ist. Diese liegt auf der 1d-ILDm (zur Diskussion von Lösungen stationärer Flammen mit hierarchisch erweiterten 1d-ILDms siehe Kapitel 5.2). In der Abbildung ist mit schwarzen Symbolen auch die Lösung des detaillierten Systems als Vergleich eingetragen (siehe auch dazu Kapitel 5.2). In Teil b) ist die verbleibende 1d-ILDm nach Schritt (A) dargestellt. Hier wurde der ( $x = n_f$ )-Teil der Erweiterung entfernt, es verbleibt nur noch die originale 1d-ILDm und die ( $x = 1$ )-Erweiterung. Dieser Schritt ist notwendig, da das für die Generierung der höherdimensionalen ILDM angewandte Verfahren der hierarchischen Generierung (siehe Kapitel 3.4 und Referenzen dort) im Bereich der

<sup>26</sup>Zu den Vorteilen solcher Simulationen siehe auch Kapitel 5.2. Für eine Erklärung der Lewis-Zahl und der Diffusivitäten wird auf [146] verwiesen; komplexe Transportmodelle im ILDM-Kontext wurden in [91] analysiert.

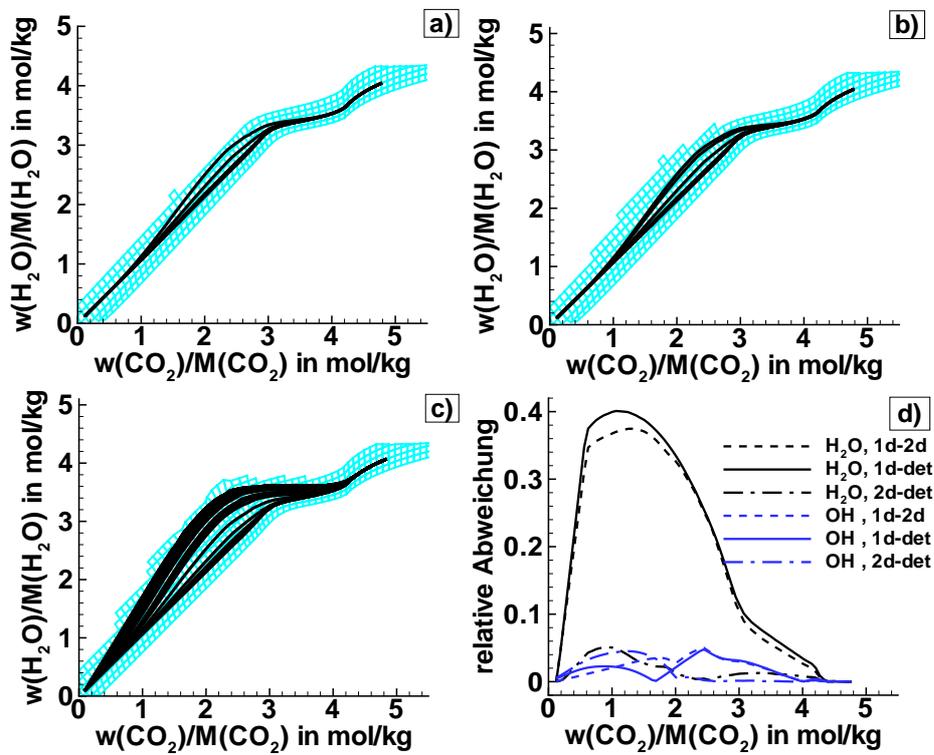
<sup>27</sup>Darunter wird die Lösung der Flammenrechnung nach  $10^4$  s verstanden.



**Abbildung 6.2:** Projektionen des Zustandsraumes in die  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ -Ebene; stöchiometrische, flache Synthesegas/Luft-Flamme. a) Orange: 1d-ILDM, zweistufig hierarchisch erweitert; schwarze Linien: Anfangsprofil und stationäre Lösung der ersten Flammenrechnung mit der 1d-ILDM; Symbole: Detaillierte, stationäre Lösung. b) 1d-ILDM nach Entfernung des  $(x = n_f)$ -Anteils der Erweiterung. c) Eine Zellreihe der 2d-ILDM nach hierarchischer Generierung. d) 2d-ILDM (cyan) mit  $(x = n_f)$ -Erweiterung und Startprofil für die zweite Flammenrechnung (schwarz).

$(x = n_f)$ -Erweiterung noch nicht untersucht wurde. Die  $(x = 1)$ -Erweiterungspunkte verbleiben in der Tabelle, da sie bereits Punkte der 2d-ILDM sind. Teil c) zeigt die hierarchisch generierte 2d-ILDM nach Erzeugung einer Zellreihe, entsprechend Schritt (B). An diese ILDM werden noch weitere Zellreihen angebaut, um eine stabile Generierung der  $(x = n_f)$ -Erweiterung zu garantieren, die ebenfalls in Schritt (B) erfolgt. In d) ist schließlich die fertige 2d-Tabelle (cyan) bei Schritt (D) gezeigt. Zusätzlich eingetragen ist die Lösung der ersten Flammenrechnung (schwarz), die für die zweite Flammenrechnung als Startlösung verwendet wird (schnellere Konvergenz). Es ist gut zu erkennen, dass die 2d-ILDM durch die hierarchische Generierung optimal an den Reaktionsfortschritt angepasst ist und

dass sie zudem nur für einige wenige Zellreihen generiert wurde, um Speicherplatz und CPU-Zeit zu sparen. Während der zweiten Flammenrechnung wird die Tabelle on-demand entsprechend der Schritte (1-8) ergänzt. Zu den Schritten (E-F) der zweiten Flammenrechnung sei auf Abbildung 6.3 verwiesen. Die Teile a) und b) der Abbildung zeigen die 2d-ILDM sowie die Flammentrajektorien zu verschiedenen Zeitpunkten der Rechnungen. Deutlich ist zu erkennen, wie während der Rechnung entsprechend den Schritten (1-8) on-demand ILDM-Zellen hinzugefügt werden. Beim Zellenanbau wird dabei darauf geachtet, dass



**Abbildung 6.3:** Projektionen des Zustandsraumes in die  $\text{CO}_2$ - $\text{H}_2\text{O}$ -Ebene; stöchiometrische, flache Synthesegas/Luft-Flamme. a) 2d-ILDM (cyan) und Flammentrajektorien (schwarz) nach erster on-demand Zellenaddition,  $t \leq 7,7 \cdot 10^{-6}$  s. b) 2d-ILDM und Flammentrajektorien nach  $t \leq 1,1 \cdot 10^{-5}$  s. c) 2d-ILDM und Flammentrajektorien nach Erreichen der stationären Lösung der zweiten Flammenrechnung. d) Relative Änderungen der Ergebnisse für die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{OH}$ , Details siehe Legende.

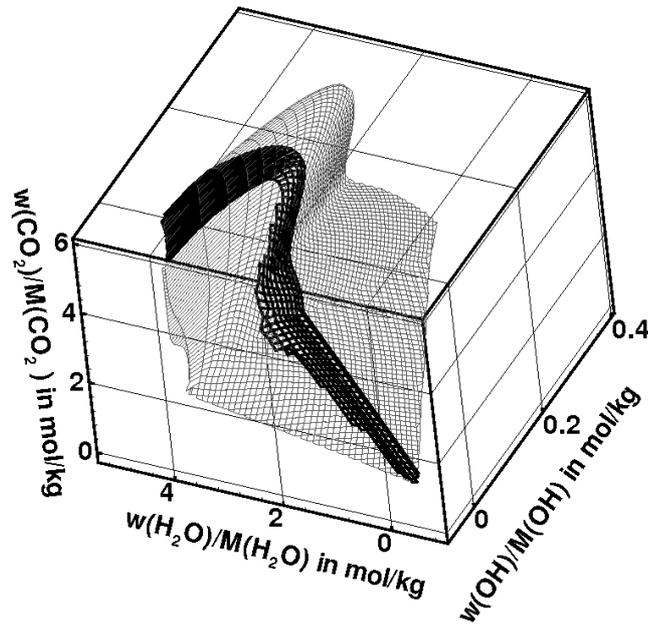
genügend Nachbarzellen für eine stabile Interpolation vorhanden sind und dass es beim Anbau nicht zu ungeschlossenen Zellen kommt. Zudem wird nach jedem Anbau die Konvexität [87] überprüft, was sicherstellt, dass keine Lücken im ta-

bellierten Bereich entstehen, die einen weiteren Anbau erschweren würden. Teil c) zeigt die ILDM sowie die Flammentrajektorien nach Erreichen der stationären Lösung; auch hier sind die zusätzlich angebauten Zellen erkennbar. Teil d) zeigt schließlich das Ergebnis des letzten Schrittes des Algorithmus (F), die Ermittlung der relativen Abweichungen zwischen den berechneten 1d- und 2d-ILDM-basierenden stationären Lösungen, in der Abbildung beispielhaft dargestellt für die Spezies  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{OH}$ . Zusätzlich ist die relative Abweichung zum jeweiligen detaillierten Ergebnis eingetragen. Zwischen 1d- und 2d-ILDM-basierter Lösung besteht wie erwartet ein großer Unterschied, der zeigt, dass sich die Erhöhung der Dimension in diesem Fall sehr positiv auswirkt. Der Vergleich mit der detaillierten Lösung zeigt außerdem, dass die 1d-ILDM-basierte Lösung in den meisten Bereichen des Zustandsraumes weit von der detaillierten Lösung abweicht. Am Kleinsten ist die Abweichung zwischen 2d-ILDM basierter und detaillierter Lösung. Das Maximum der Abweichungen wird im Bereich von  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} \approx 1,1$  mol/kg erreicht, also im Bereich der langsamen Chemie. Dies liegt daran, dass in diesem Bereich mehr und mehr Zeitskalen langsam werden und damit in Wechselwirkung mit den physikalischen Zeitskalen treten. Damit wäre eine deutlich erhöhte ILDM-Dimension notwendig, um die detaillierte Lösung noch besser anzunähern.

Um die Effizienz der on-demand Generierung darzustellen, ist in Abbildung 6.4 eine vollständige 2d-ILDM (mit einstufiger Erweiterung) dargestellt (cyan), als Vergleich dazu die während der oben diskutierten Flammenrechnung on-demand generierte Tabelle. Die Zellenanzahl beträgt in der vollständigen Tabelle 2691 (bei 2814 Knoten), in der on-demand generierten Tabelle dagegen nur 427 (bei 507 Knoten). Bei der on-demand-Rechnung entfällt also die Berechnung von 2264 Zellen beziehungsweise der für diese Zellen benötigten Knoten - entsprechend viel Rechenzeit wird eingespart, da an den Knoten jeweils mehrere Werte berechnet werden müssen (Transportmatrix usw., siehe die Terme in der Gleichung (3.20)). Führt man die im Rahmen der on-demand Rechnung ablaufenden Berechnungen separat aus<sup>28</sup> und vergleicht die dafür benötigte Zeit mit der Rechenzeit für eine Rechnung nach dem neuen Algorithmus, ergibt sich eine Einsparung an Rechenzeit von  $\approx 20\%$  zugunsten der hier vorgestellten on-demand-Erzeugung; dabei ist der erhöhte Zeitaufwand seitens des Benutzers nicht mit eingerechnet<sup>29</sup>, so

<sup>28</sup>Berechnung der 1d- und 2d-ILDMS und ihrer Erweiterungen, zwei Flammenrechnungen mit den ILDMs, Fehlerberechnung.

<sup>29</sup>Die ILDMs müssen separat erzeugt und verlängert werden, die Flammenrechnungen sind jeweils separat zu starten, ebenso die Fehlerberechnung.



**Abbildung 6.4:** Projektionen des Zustandsraumes in den  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O-OH}$ -Raum; grau: Vollständige 2d-ILDM, schwarz: On-demand generierte Tabelle der freien Synthesegas/-Luft-Flamme.

dass die tatsächliche Ersparnis noch sehr viel deutlicher ausfällt.<sup>30</sup> Hinsichtlich des belegten Speichers wird bereits bei dem vorliegenden einfachen Beispiel eine Reduzierung um 82% erreicht; dies verdeutlicht, wie lohnenswert die on-demand Generierung ist. Eine weitere Optimierung der Speicherplatzbelegung könnte erfolgen, wenn bereits verwendete Zellen aus der Tabelle entfernt würden; am Ende wäre dann von der im gezeigten Beispiel on-demand generierten 2d-ILDM nur eine röhrenförmige ILDM übrig. Wenn sich bereits bei dem vorgestellten Beispiel einer eindimensionalen Simulation einer freien laminaren Flamme mit 1d- und 2d-ILDMS eine deutliche Ersparnis an Rechenzeit und Speicherplatzbedarf ergibt, ist die zu erwartende Einsparung bei komplexeren Anwendungsfällen<sup>31</sup> noch deutlich höher. Festgehalten werden kann, dass neben der diskutierten Einsparung an Computerressourcen die vom Benutzer einzubringende Vorkenntnis bei der Erzeugung von ILDM-Tabellen durch das Verfahren reduziert wird. Zudem

<sup>30</sup>Zur Einsparung, die durch Verwendung eines reduzierten Mechanismus gegenüber der detaillierten Rechnung erzielt werden kann siehe [3]; dort wird die Einsparung mit 50% angegeben.

<sup>31</sup>Reduktionsstrategien wie die hier vorgestellte haben ihren Einsatzbereich nicht unbedingt bei ein-, sondern eher bei mehrdimensionalen Simulationen.

entfallen etliche Schnittstellen, was das Verfahren ebenfalls benutzerfreundlicher macht.

## 6.3 Zusammenfassung

Es wurde ein Algorithmus zur on-demand Generierung von hierarchisch erweiterten und hierarchisch generierten ILDMs in generalisierten Koordinaten vorgestellt. Dabei werden die eingesetzten ILDM-Tabellen nicht vor, sondern on-demand während der Anwendung (also während der Strömungssimulation) erzeugt. Zudem wird nach der ersten Rechnung basierend auf einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM die Tabellendimension auf  $(n_c + 1)$  erhöht und eine Neuberechnung des Resultats der ersten Rechnung mit anschließender Fehlerabschätzung durchgeführt. Das Verfahren nutzt die hierarchisch erweiterten ILDMs, die in Kapitel 5 vorgestellt wurden. Dadurch wird im Bereich der langsamen Chemie die Qualität der reduzierten Lösung verbessert; außerdem stellen die hierarchisch erweiterten ILDMs eine optimale Basis für die nach der ersten Flammenrechnung (oder allgemeiner: Strömungssimulation) durchgeführte Dimensionserhöhung mittels hierarchischer Generierung dar. Der Einsatz generalisierter Koordinaten bietet darüber hinaus optimale Voraussetzungen für eine on-demand-Erweiterung der ILDM-Tabellen während der Flammenrechnung.

Mit der on-demand-Berechnung kann die vorab vorgegebene ILDM-Tabelle auf ein Minimum beschränkt werden; während der Flammenrechnung werden nur diejenigen Zellen angebaut, die tatsächlich benötigt werden. Dies erhöht die Effizienz der Berechnung sowohl bei der CPU-Zeit als auch beim Speicherplatz, der durch die Tabelle belegt wird. Die Dimensionserhöhung nach der ersten Flammenrechnung und die anschließende Neuberechnung des Resultates mit einer höherdimensionalen ILDM-Tabelle und anschließender Fehlerkontrolle ermöglichen den automatisierten Einsatz von ILDM-Tabellen mit unterschiedlicher Dimension; dies erspart dem unerfahrenen Nutzer das Bestimmen der optimalen Tabellendimension und reduziert die Schnittstellen. Die Dimensionserhöhung erfolgt unter Ausnutzen der hierarchischen Struktur der ILDMs und gewährleistet so eine optimale Anpassung der höherdimensionalen Tabelle an den Reaktionsfortschritt. Der vorgestellte Algorithmus stellt damit eine effiziente Möglichkeit der Berechnung von ILDMs dar. Eindimensionale Simulationen für freie Synthesegas/Luft-Flam-

men verifizierten den Algorithmus und zeigten seine Leistungsfähigkeit.

Hinsichtlich der ILDM- und System-Dimension ist der Algorithmus nicht auf bestimmte Dimensionen begrenzt und kann deshalb auf beliebig komplexe Systeme und Flammenkonfigurationen angewandt werden. Insbesondere ist auch die Simulation nicht-vorgemischter Flammen möglich, wobei die Elementzusammensetzung als weitere Koordinate in den ILDMs verwendet wird. Mit zunehmender Dimension der ILDM-Tabelle und mit zunehmender Komplexität des Systems steigt die Effizienz des Verfahrens. Die vorgestellten Algorithmen können in beliebige Programme zur Strömungssimulation implementiert werden.

Neben dem hier vorgestellten Ansatz der Verwendung von ILDMs mit fixer Dimension über den ganzen Zustandsraum wäre eine weitere Ausbaumöglichkeit für den on-demand-Algorithmus denkbar: Eine voll adaptive Implementierung der Tabelle, bei der für jeden Zustand mittels einer online-Fehlerkontrolle<sup>32</sup> die lokal optimale Dimension der ILDM ermittelt wird. Aufgrund des zusätzlichen Aufwands für die online-Fehlerkontrolle und die lokale Anpassung der ILDM-Dimension erhebt sich allerdings die Frage, ob ein solches Verfahren zu einer weiteren Einsparung von Rechenzeit oder nicht eher zu deren Erhöhung führen würde. Zudem zeigten bisherige Berechnungen mit ILDM-Tabellen einer globalen Dimension gute Ergebnisse (siehe zum Beispiel [4]). Schließlich würde der Bereich der langsamen Chemie am meisten von einer lokalen Anpassung der ILDM-Dimension profitieren (siehe den deutlichen Anstieg der in diesem Bereich benötigten ILDM-Dimension zum Beispiel in Kapitel 7.4 und in [122]); um aber für diesen Bereich bessere Resultate zu erzielen, kann auch auf ein anderes Mannigfaltigkeitskonzept ausgewichen werden (zum Beispiel auf Reaktions-Diffusions-Mannigfaltigkeiten [27], [29], [30]).

---

<sup>32</sup>Für Referenzen dazu siehe Kapitel 6.1.

# Kapitel 7

## Dynamik periodisch gestörter Gegenstromflammen

### 7.1 Einleitung

Instabilitäten der Verbrennung sind ein großes Problem in praktischen Systemen, zum Beispiel bei mager betriebenen Gasturbinen mit vorgemischter Verbrennung. Hier können Verbrennungsinstabilitäten eine Herabsetzung des Wirkungsgrades und im Extremfall auch die Zerstörung der Turbine bewirken [32]. Diese Instabilitäten werden durch periodische Störungen des Strömungsfeldes und/oder des Äquivalenzverhältnisses des einströmenden Gemisches verursacht, die beispielsweise durch bestimmte akustische Eigenschaften des Brenners oder des Zuleitungssystems zustande kommen können [32]. Um wirkungsvolle Maßnahmen zur Verhinderung der Instabilitäten und deren Folgen finden und anwenden zu können, muss zunächst ein grundlegendes Verständnis der Auswirkungen periodischer Störungen auf die komplexe Wechselwirkung zwischen chemischen und physikalischen Prozessen bei der Verbrennung gewonnen werden. Dafür wurden bereits unterschiedliche Aspekte gestörter Flammen untersucht, wozu hier ein kurzer Überblick über einige Arbeiten gegeben wird. In [132] wurden magere Methan/-Luft-Flammen unter dem Einfluß zeitabhängiger Störungen der Streckungsrate untersucht. Dabei stellte sich heraus, dass mit zunehmender Frequenz ein zunehmender Zeitverzug zwischen Störung und Flammenreaktion auftritt und dass die Amplitude der Flammenreaktion mit zunehmender Frequenz abnimmt. In Kapi-

tel 7.3.1 werden diese Ergebnisse nochmals kurz aufgegriffen und erklärt. In [63] wurden Gegenstromflammen unter dem Einfluß oszillierender Streckungsraten untersucht (bei Anwendung von large activation energy asymptotics); die Untersuchung galt besonders solchen Flammen, die sich nahe dem Verlöschen oder nahe dem Gleichgewicht befinden. Beim Verhalten der Reaktionszone und der Wärmefreisetzung ergab sich, dass die Flammenantwort hauptsächlich von zwei Effekten abhängt: Den Auswirkungen der Störung auf den konvektiven Massenfluß in die Reaktionszone und von der Störungsantwort der Reaktionszone selbst, insbesondere der Anpassung der charakteristischen Verweilzeit. In [50] wurde das Antwortverhalten einer stabilisierten laminaren vorgemischten Rohrflamme auf Oszillationen des Strömungsfeldes mit Hilfe eines analytischen Modells beschrieben. Danach hängt die Reaktion der Wärmefreisetzung der Flamme und ihre Phase zur Störung von der Strouhal-Zahl ab. Die Wärmefreisetzung laminarer vorgemischter Flammen ist auch Thema in [32]; hier wurden allerdings Veränderungen des Äquivalenzverhältnisses untersucht. Als bestimmende Faktoren für die Reaktion der Wärmefreisetzung auf die Störung stellten sich dabei die Veränderung der Flammenzone und der Flammengeschwindigkeit heraus. In [79] wurde ein Modell entwickelt, das die Stabilitätsgrenzen in Gasturbinen mit geringer  $\text{NO}_x$ -Bildung in Abhängigkeit von Störungen der Gemischzusammensetzung vorhersagt. [38] analysierte laminare nicht-vorgemischte Wasserstoff/Luft-Gegenstromflammen unter dem Einfluß periodischer Störungen der Streckungsrate mit Hilfe einer impliziten finiten Differenzenmethode. In [39] wurden schließlich stabilisierte laminare vorgemischte Methan/Luft-Flammen mit zeitlichen Variationen des Äquivalenzverhältnisses untersucht. Schwerpunkte sind dabei die Flammentemperatur und die  $\text{NO}_x$ -Emission. Weitere Veröffentlichungen beschäftigen sich mit akustischen Störungen, siehe zum Beispiel [74], [118] und [126]. Viele weitere Aspekte gestörter Flammen wurden in Veröffentlichungen vorgestellt.<sup>33</sup> Analysen eindimensionaler Flammen finden sich in Publikationen zum Thema Flamelet-Analyse, zum Beispiel in [1], [34], [35], [43] und [140]. Im Rahmen reduzierter Mechanismen wurden Flammen unter dem Einfluß von instationären Strömungsfeldern in [44] untersucht. Für weitere Literatur sei auf die Angaben in den zitierten Publikationen verwiesen.

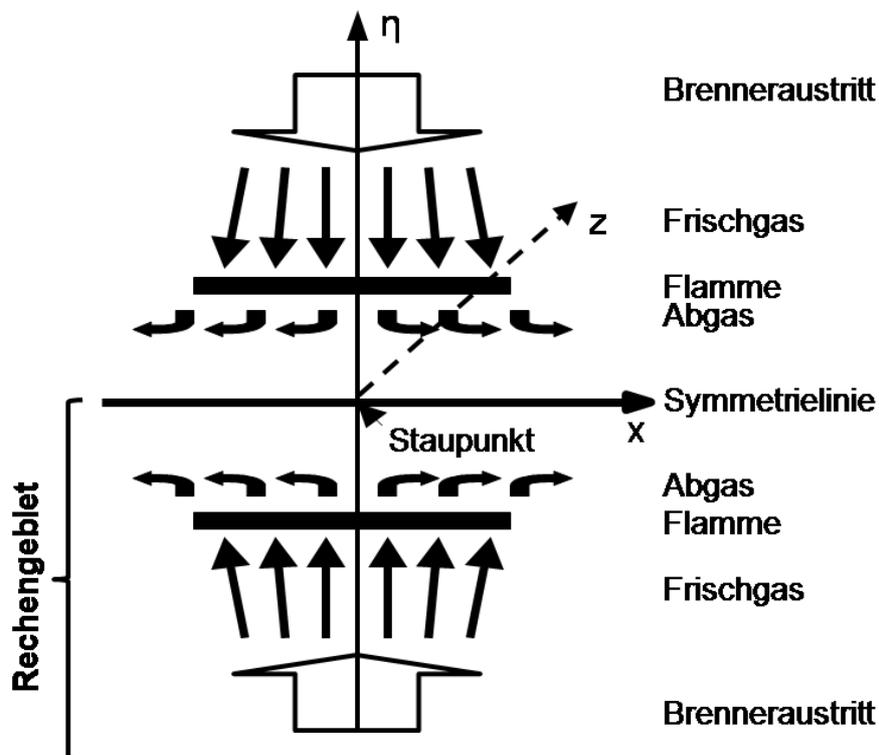
In dieser Arbeit werden eindimensionale Simulationen eingesetzt, um die Dynamik periodisch gestörter vorgemischter Methan/Luft-Flammen in einer Gegen-

<sup>33</sup>Als weitere Literatur sei genannt: [21], [62], [68], [94], [133], [137], [145].

stromanordnung zu untersuchen [73].

## 7.2 Modell für die Flammenrechnungen

Betrachtet werden laminare gestreckte vorgemischte Methan/Luft-Flammen in einer symmetrischen Gegenstromanordnung. Eine solche Anordnung führt im vorgemischten Fall zur Ausbildung einer Zwillingsflamme, deren Symmetrie eine Beschränkung der Simulation auf eine Hälfte der Konfiguration (vom Brennerausgang bis zur Symmetrielinie) ermöglicht. Die Anordnung und das Rechengebiet sind in der Abbildung 7.1 schematisch dargestellt. Um das System in nur einer



**Abbildung 7.1:** Schematische Darstellung einer rotationssymmetrischen Gegenstromanordnung mit Ausbildung einer Zwillingsflamme im vorgemischten Fall. Ebenfalls eingetragen ist das Rechengebiet der durchgeführten Simulationen.

Raumdimension<sup>34</sup> simulieren zu können, werden Grenzschnittnäherungen einge-

<sup>34</sup>Diese Dimension entspricht der Richtung senkrecht zur Flamme.

setzt [131]<sup>35</sup>. Dadurch verschwinden die Gradienten der Temperatur, des Druckes, der Speziesmassenbrüche und eine Geschwindigkeitskomponente in der zur Flamme tangentialen Richtung. Senkrecht zur Flamme wird das Verschwinden des Druckgradienten gefordert. Für den resultierenden Fall einer eindimensional beschreibbaren Gegenstromanordnung lassen sich die Erhaltungsgleichungen [146] wie folgt angeben:

- Kontinuitätsgleichung:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -(j+1) \cdot \rho \cdot G - \frac{1}{\eta_\alpha} \cdot \frac{\partial}{\partial \eta} (\rho \cdot \eta^\alpha \cdot v_\eta). \quad (7.1)$$

- Impuls in x-Richtung:

$$\rho \cdot \frac{\partial G}{\partial t} = \frac{1}{\eta_\alpha} \cdot \frac{\partial}{\partial \eta} (\mu \cdot \eta_\alpha \cdot \frac{\partial G}{\partial \eta}) - \rho \cdot v_\eta \cdot \frac{\partial G}{\partial \eta} - \rho \cdot (G^2 - j \cdot W^2) - \frac{1}{x} \cdot \frac{\partial p}{\partial x}. \quad (7.2)$$

- Impulserhaltung in tangentialer Richtung:

$$\rho \cdot \frac{\partial W}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \eta} (\mu \cdot \frac{\partial W}{\partial \eta}) - \rho \cdot v_\eta \cdot \frac{\partial W}{\partial \eta} - 2 \cdot \rho \cdot G \cdot W. \quad (7.3)$$

Die Größe  $G$  ist dabei ein tangentialer Geschwindigkeitsgradient:

$$G(\eta, t) = \frac{v_x}{x}, \quad (7.4)$$

und  $W$  bezeichnet den radialen Geschwindigkeitsgradienten:

$$W(z, t) = \frac{v_\Theta}{r}. \quad (7.5)$$

Die Größe  $J$  ist ein tangentialer Druckgradient, der sich wie folgt berechnet [131], [132]:

$$J(\eta, t) = -\frac{1}{x} \cdot \frac{\partial p}{\partial x}. \quad (7.6)$$

Der Zusammenhang von  $J$  mit der Streckung  $a$  ist durch die Gleichung

<sup>35</sup>Unter Grenzschicht wird hier die Umgebung oberhalb und unterhalb der Staupunktsebene verstanden. Hier findet eine deutliche Änderung der die Strömung charakterisierenden Größen gegenüber ihren Werten in der Umgebung statt.

$$J = -\rho_{ub} \cdot a^2 \quad (7.7)$$

gegeben.  $J$  ist ein Eigenwert des Systems, es gilt zusätzlich zu den Erhaltungsgleichungen:

$$\frac{\partial}{\partial \eta} \left( \frac{1}{x} \cdot \frac{\partial p}{\partial x} \right) = \frac{\partial}{\partial \eta} J = 0. \quad (7.8)$$

Mit Hilfe der in den Erhaltungsgleichungen enthaltenen Größen  $j$  und  $\alpha$  können die Gleichungen auf die jeweils vorliegende Geometrie der Gegenstromanordnung angepasst werden, wobei folgende Werte gelten:

- Rotationssymmetrische Anordnung:  $j=1$  und  $\alpha=0$ ,
- planare Flamme:  $j=0$  und  $\alpha=0$  sowie für die
- Rohrflamme:  $j=0$  und  $\alpha=1$ .

Darüber hinaus sind zur Lösung der Erhaltungsgleichungen Randbedingungen notwendig; dabei muss unterschieden werden, ob die Anordnung symmetrisch oder nicht-symmetrisch ist. Eine symmetrische Anordnung liegt dann vor, wenn aus beiden Seiten vorgemischtes Gemisch strömt, eine nicht-symmetrische, wenn aus einer Seite Brennstoff, aus der anderen das Oxidationsmittel austritt. Randbedingungen werden angegeben für die Speziesmassenbrüche, Temperatur und Geschwindigkeit sowie jeweils den tangentialen Druck- und Geschwindigkeitsgradienten. Für die hier betrachtete rotationssymmetrische Anordnung wurden am unverbrannten Rand Dirichlet-Bedingungen für Temperatur, Speziesmassenbrüche und den tangentialen Druckgradienten gesetzt, Neumann-Bedingungen für die anderen genannten Größen. Am verbrannten Rand (für die symmetrische Anordnung liegt dieser auf der Symmetrieebene) wird für die Geschwindigkeit eine Dirichlet-Bedingung gesetzt:  $v=0$  m/s entsprechend der Symmetriebedingung; für die anderen Größen gelten Neumann-Bedingungen. Die Dirichlet-Bedingungen am unverbrannten Rand werden verwendet, um die Störungen der Gemischzusammensetzung beziehungsweise des Strömungsfeldes zu realisieren: In Form zeitabhängiger Werte für die Speziesmassenbrüche beziehungsweise den tangentialen

Druckgradienten. So wird bei einer periodischen Störung der Gemischzusammensetzung der Massenbruch des Brennstoffs  $\text{CH}_4$  gemäß der Gleichung

$$w_{\text{CH}_4}(t) = \bar{w}_{\text{CH}_4} + \hat{w}_{\text{CH}_4} \cdot \sin(2 \cdot \pi \cdot f \cdot t) \quad (7.9)$$

variiert, wobei  $\bar{w}_{\text{CH}_4}$  den Mittelwert der Störung bezeichnet,  $\hat{w}_{\text{CH}_4}$  die Amplitude,  $f$  die Frequenz und  $t$  die Zeit. Luft wird näherungsweise als Gemisch aus  $\text{O}_2$  und  $\text{N}_2$  angenommen, wobei deren Massenbrüche durch zwei Gleichungen gegeben sind:

- Das Verhältnis von Sauerstoff und Stickstoff in der Luft bleibt konstant:

$$\frac{w_{\text{O}_2,\text{air}}(t)}{w_{\text{N}_2,\text{air}}(t)} = c \quad (7.10)$$

und

- die Summe der Massenbrüche aller Spezies an der unverbrannten Grenze ist 1:

$$w_{\text{CH}_4}(t) + w_{\text{O}_2,\text{air}}(t) + w_{\text{N}_2,\text{air}}(t) = 1. \quad (7.11)$$

Damit ergeben sich die Gleichungen für die  $\text{O}_2$ - bzw.  $\text{N}_2$ -Massenbrüche:

$$w_{\text{O}_2,\text{air}}(t) = \frac{c \cdot (1 - w_{\text{CH}_4}(t))}{1 + c}, \quad (7.12)$$

$$w_{\text{N}_2,\text{air}}(t) = \frac{1 - w_{\text{CH}_4}(t)}{1 + c}. \quad (7.13)$$

Die periodische Störung des Strömungsfeldes wird analog mit Hilfe einer zeitabhängigen Randbedingung für den tangentialen Druckgradienten  $J = -x^{-1} \cdot \partial p / \partial x$  realisiert:

$$J(t) = \bar{J} + \hat{J} \cdot \sin(2 \cdot \pi \cdot f \cdot t). \quad (7.14)$$

Eine derartige Änderung des tangentialen Druckgradienten ist aufgrund der Gleichung (7.7) gleichbedeutend mit einer Variation der Streckung oder einer Variation der Ausströmgeschwindigkeit des unverbrannten Gemisches.

Insgesamt weisen diese Randbedingungen drei Freiheitsgrade auf, die die Simulation unterschiedlichster Störungen erlauben: Frequenz, Amplitude und Mittelwert. Die Simulation bietet dabei den Vorteil, dass große Parameterbereiche analysiert und auch Parameterwerte erreicht werden können, die Experimenten nicht

oder nur schwer zugänglich sind. Zusätzlich ist es möglich, die Randbedingungen in Bezug auf die Form der Störung zu ändern.

Als Simulationstool wurde das Programmpaket INSFLA [83], [91] eingesetzt und entsprechend für den Einsatz zeitabhängiger Randbedingungen modifiziert. Mit INSFLA wurden auch die Zeitskalenanalysen durchgeführt, mit deren Hilfe ein detaillierter Einblick in die chemische Kinetik erhalten wird. Die diesen Analysen zugrundeliegenden Modelle werden später (Kapitel 7.4 und 7.5) vorgestellt.

### 7.3 Ergebnisse der Flammenrechnungen

Mit dem im vorhergehenden Kapitel 7.2 vorgestellten Modell wurden Simulationen gestörter laminarer vorgemischter Methan/Luft-Gegenstromflammen durchgeführt. Dabei wurde ein detaillierter Methan-Mechanismus (34 Spezies und 151 Elementarreaktionen; Mechanismus ohne NO-Chemie [31]) und ein detailliertes Transportmodell mit  $Le \neq 1$  und ungleichen Diffusivitäten verwendet. Die Temperatur im Unverbrannten wurde jeweils mit 298 K angenommen, der Druck betrug konstant 1 bar. Bei den Rechnungen mit periodischer Variation der Gemischzusammensetzung entsprachen die mittleren Speziesmassenbrüche der stöchiometrischen Zusammensetzung. Die Amplitude wurde mit 10% dieses Mittelwertes angenommen. Der tangential Druckgradient betrug  $-0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  und lag damit deutlich unterhalb der Löschgrenze einer stöchiometrischen Methan/Luft-Gegenstromflamme (diese wurde mit  $J_{ext} \approx -1,68 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  ermittelt<sup>36</sup>). Die Störung des Strömungsfeldes wurde für die stöchiometrische Gemischzusammensetzung untersucht; als Mittelwert des tangentialen Druckgradienten wurde  $-0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  gewählt sowie eine Amplitude von 50% dieses Mittelwertes, resultierend in maximalen beziehungsweise minimalen Druckgradientenwerten von  $-1,2 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  und  $-0,4 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ . Die untersuchten Frequenzen für beide

<sup>36</sup>Für Literaturwerte zur Streckgrenze siehe zum Beispiel [132], dort wurde berechnet: Mit C<sub>1</sub>-Chemie  $a \approx 2020 \text{ 1/s}$ , mit C<sub>2</sub>-Chemie  $a \approx 2540 \text{ 1/s}$  und mit C<sub>3</sub>-Chemie  $a \approx 2890 \text{ 1/s}$ . Experimenteller Wert [132]:  $a \approx 1634 \text{ 1/s}$ . Das hier ermittelte  $J_{ext} \approx -1,68 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  entspricht  $a \approx 1230 \text{ 1/s}$ . Abweichungen sind mit Unterschieden in den Mechanismen und mit der Intervallschachtelung zur Bestimmung der Streckgrenze zu erklären. Unterschiede zum Experiment ergeben sich durch die bei der Simulation durchgeführte Anpassung des Problems auf eine Raumdimension; zudem sind keine Fehlerbalken des Experiments bekannt. Literaturwerte wurden aus Graphiken abgelesen und unterliegen damit Ableseabweichungen.

Störungsfälle lagen zwischen 20 und 1000 Hz. Bei der folgenden Auswertung werden jeweils beide Störungen parallel im Hinblick auf die gleiche Fragestellung untersucht, um den Vergleich und das Aufzeigen von Ähnlichkeiten zu erleichtern.

### 7.3.1 Ausbreitung der Störung

Bevor die Reaktion der Flamme auf eine Störung analysiert werden kann, muss zunächst das Verhalten der Störung selbst untersucht werden. Fragestellungen von Interesse sind dabei: Wie erreicht die Störung die Flamme (wie bewegt sich die Störung)? Erfährt die Störung Änderungen, bevor sie die Flamme erreicht? Sind diese Effekte frequenzabhängig und gibt es eventuell Bedingungen, unter denen die Störung nicht bis zur Flamme vordringen kann? Eine Analyse des zeitlich und im Ort aufgelösten Verhaltens der Störung kann Antworten auf diese Fragen geben. In Abbildung 7.2 ist diese Analyse zunächst für die Störung der Gemischzusammensetzung dargestellt. Auf der linken Seite der Abbildung sind für verschiedene Frequenzen dreidimensionale Projektionen der gestörten Spezies  $\text{CH}_4$  über Ort und Zeit dargestellt; zur besseren Visualisierung zeigt die rechte Seite zusätzlich Schnitte durch die 3d-Graphiken zu unterschiedlichen Zeitpunkten während der Störung. Für die niedrigste Frequenz, 20 Hz, sind die Störungswerte über dem Ort konstant, es ist keine Amplitudenabnahme zu erkennen - quasistationäre Werte der Störung erreichen die Flamme (die sich bei 0,005...0,007 m befindet) instantan (ohne Zeitverzögerung). Die Werte an der Flamme entsprechen damit dem am Rand momentan durch die Störung vorgegebenen Wert, also einem bestimmten Äquivalenzverhältnis, wobei keine Veränderung des Wertes vom Rand zur Flamme erfolgt. Bei höheren Frequenzen (insbesondere bei 1000 Hz) ist ein anderes Verhalten zu erkennen: Eine wellenförmige Ausbreitung der Störung hin zur Flamme; eine Quasistationarität ist nicht zu sehen. Mittels einer Wellenvorstellung kann das unterschiedliche Störungsverhalten bei niedrigen und hohen Frequenzen erklärt werden. Dazu wird die Wellenlänge  $\lambda$  ermittelt, die der Störung durch Frequenz  $f$  und Strömungsgeschwindigkeit  $v_{\text{Rand}}$  am Rand aufgeprägt wird und sich als

$$\lambda = \frac{v_{\text{Rand}}}{f} \quad (7.15)$$

berechnen lässt. Dabei muss einschränkend beachtet werden, dass die Strömungsgeschwindigkeit sich natürlich über das gesamte Strömungsfeld betrachtet zwi-

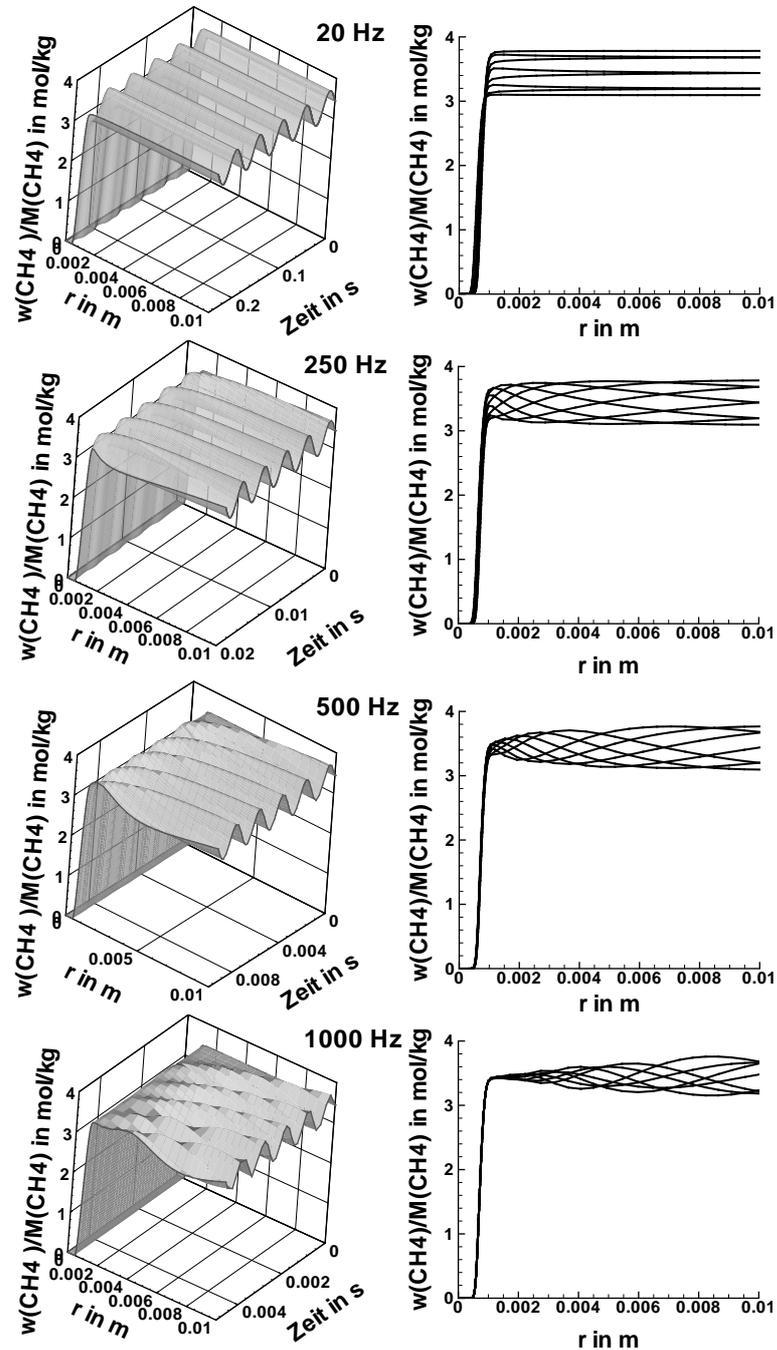


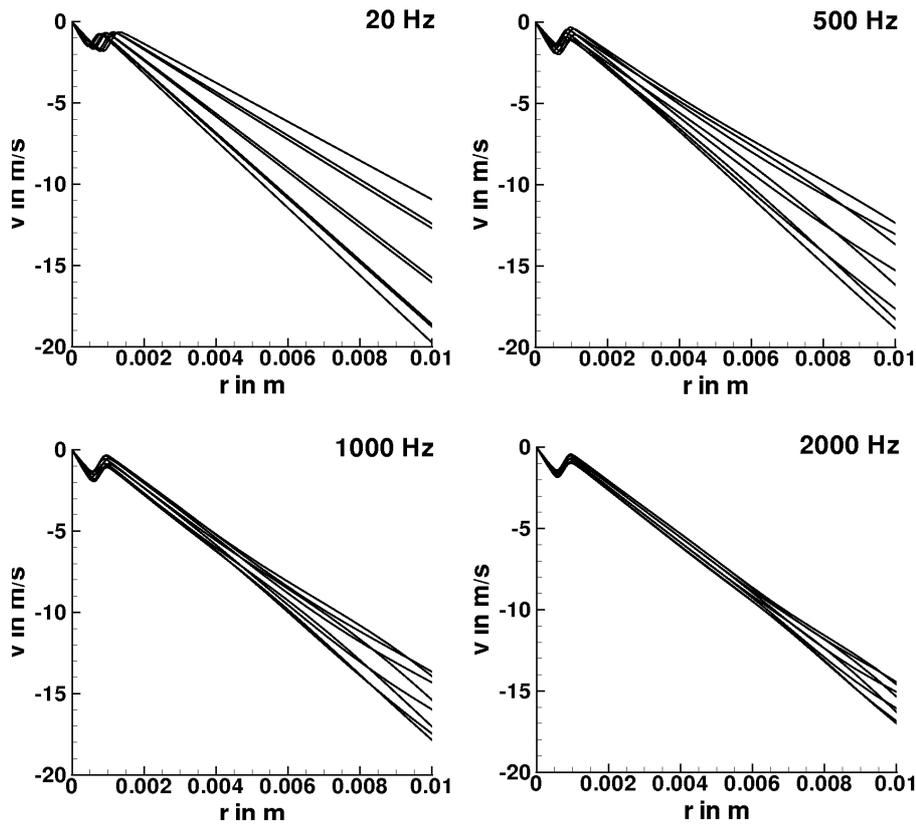
Abbildung 7.2: Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Gemischzusammensetzung; Mittelwert der Störung  $\phi = 1,0$ ,  $\hat{w} = 0,10 \cdot \bar{w}$  des Mittelwerts; Frequenzen 20, 250, 500, 1000 Hz (von oben nach unten). Linke Seite: Zeitlicher und räumlicher Verlauf der Spezies  $\text{CH}_4$ ; rechte Seite: Räumlicher Verlauf von  $\text{CH}_4$  für verschiedene Zeitpunkte.

sehen Rand und Flamme verändert und nicht konstant ist, insoweit liefert Gleichung (7.15) nur eine Näherung. Hinsichtlich des Zusammenhangs von Wellenlänge und Frequenz ergibt Gleichung (7.15), dass die Wellenlänge der Störung mit zunehmender Frequenz abnimmt. Dabei sind die bei niedrigen Frequenzen sich ergebenden Wellenlängen - je nach Wert von  $v_{\text{Rand}}$  - so groß, dass sie die Systemgröße (hier: 1 cm) deutlich übersteigen (hier beträgt die Wellenlänge bei 20 Hz ca. 80 cm). Damit ist erklärt, weshalb sich die Störungsausbreitung je nach Frequenz so unterschiedlich darstellt: Für niedrige Frequenzen ist die Wellenlänge der Störung so groß, dass das Rechenggebiet nur einen ganz kleinen Ausschnitt einer Wellenlänge zeigt und damit eine Erfassung der wellenförmigen Ausbreitung unmöglich macht; es kommen daher nur quasistationäre Werte an der Flamme an. Für hohe Frequenzen ist dagegen die Wellenlänge deutlich kleiner als das Rechenggebiet, mehrere Wellenberge und -täler sind sichtbar. Diese Erkenntnis spielt eine wichtige Rolle bei der Betrachtung periodischer Störungen in praktischen Verbrennungssystemen, da es offensichtlich Kombinationen aus Störungs-Wellenlänge und Systemabmessungen gibt, bei denen die Flamme lediglich von quasistationären Werten erreicht wird. Wichtig ist dies zum einen bei der Auslegung von Experimenten zur Untersuchung periodischer Störungen, zum anderen können daraus aber auch Anhaltspunkte für die Auslegung realer Systeme gewonnen werden.

Ein weiterer Punkt ist beim Vergleich des zeitlich und örtlich aufgelösten Störungsverlaufs auffällig: Je höher die Frequenz der Störung, desto geringer ist die an der Flamme ankommende Störungsamplitude. Ein Vergleich der Frequenzen 20 und 1000 Hz macht dies besonders deutlich: Während bei 20 Hz die Amplitude in unveränderter Stärke an der Flamme ankommt, ist sie bei 1000 Hz an der Flamme fast nicht mehr erkennbar; bei der hohen Frequenz erreicht nur ein Mittelwert die Flamme. Eine anschauliche Erklärung für dieses Verhalten liefert erneut die Vorstellung einer Störungswelle: Bei niedrigen Frequenzen ist die Wellenlänge groß, damit sind die auftretenden Krümmungen (der Wellenberge und -täler) gering und entsprechend sind diffusive Prozesse langsam [146]. Bei hohen Frequenzen und der damit verbundenen geringen Wellenlänge werden die Krümmungen größer und die diffusiven Prozesse schneller, was einen zügigeren Abbau der Störungsamplitude zur Folge hat. Mit einem Beispiel eines parabolischen Gleichungssystems, auf das zur Lösung die Methoden der Fourier-Transformation und Trennung der Variablen angewendet werden, kann das Verhalten der Störung nachvollzogen werden [73]. Es ergibt sich, dass sich die Lösung des Gleichungssys-

tems im gestörten Fall mit wachsender Frequenz der ungestörten Lösung nähert, was dem hier beschriebenen Verhalten entspricht [73].

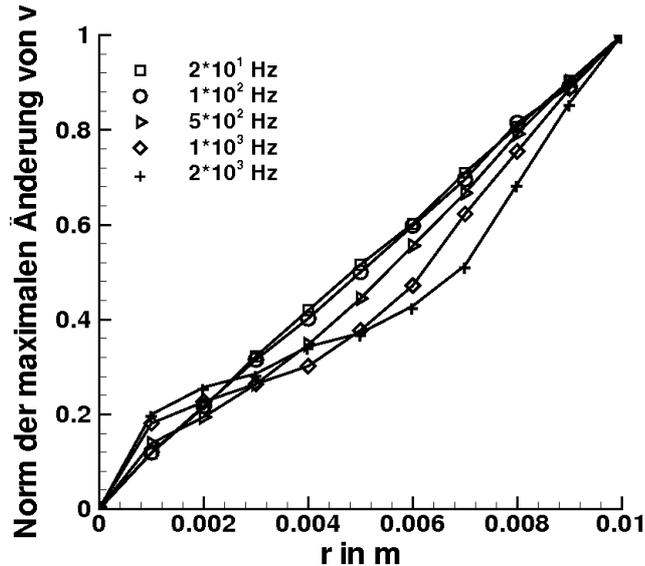
Um die Ausbreitung einer Störung des Strömungsfeldes zu veranschaulichen, wurde in Abbildung 7.3 die Strömungsgeschwindigkeit über der Ortskoordinate aufgetragen, jeweils zu verschiedenen Zeitpunkten und bei unterschiedlichen Frequenzen (von oben nach unten: 20, 500, 1000 und 2000 Hz). Bezüglich der Aus-



**Abbildung 7.3:** Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20, 500, 1000, 2000 Hz;  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die Strömungsgeschwindigkeit über der Ortskoordinate für verschiedene Zeitpunkte während einer vollen Störungsperiode.

breitung der Störung ergibt sich das gleiche Ergebnis wie zuvor bei der Störung der Gemischzusammensetzung: Niedrige Frequenzen und die dabei auftretenden großen Wellenlängen führen zu quasistationären Werten an der Flamme und es ist keine wellenförmige Ausbreitung der Störung zu erkennen; diese wird erst bei hohen Frequenzen sichtbar. Im Unterschied zur Störung der Gemischzusammensetzung sind die auftretenden Amplituden an der Flamme jedoch bei allen

Frequenzen sehr gering. Ebenso ist die wellenförmige Ausbreitung nur schwach sichtbar; daher wurde zur genaueren Darstellung des Amplitudenverhaltens noch eine andere Auftragung gewählt: Abbildung 7.4 zeigt die maximale Änderung der Strömungsgeschwindigkeit (doppelte Amplitude) während einer Störungsperiode, aufgetragen über dem Ort. Um einen direkten Vergleich des Verhaltens bei den



**Abbildung 7.4:** Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20, 500, 1000, 2000 Hz;  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die maximale Änderung der Flammengeschwindigkeit (jeweils normiert mit ihrem Randwert) über der Ortskoordinate.

verschiedenen Frequenzen zu ermöglichen, wurde eine Normierung durchgeführt: Die Werte der maximalen Änderungen bei einer bestimmten Frequenz wurden auf den am unverbrannten Rand auftretenden Wert der maximalen Änderung bei der jeweiligen Frequenz bezogen. Dadurch ergibt sich an diesem unverbrannten Rand ein gleicher Wert von 1 für die normierte maximale Änderung bei allen Frequenzen. Der Wert 0 am verbrannten Rand ist mit der Symmetrierandbedingung ( $v = 0 \text{ m/s}$ , siehe oben) zu erklären. Zwischen den extremen Werten 0 und 1 ergibt sich bei allen Frequenzen eine deutliche Abnahme der normierten maximalen Änderung vom Rand hin zur Flamme. Im Gegensatz zu den Ergebnissen bei Flammen mit gestörter Gemischzusammensetzung (hier blieb die Amplitude bei niedrigen Frequenzen nahezu konstant, siehe oben), tritt die Abnahme bereits bei der niedrigsten Frequenz von 20 Hz sehr deutlich auf. Bei dieser Frequenz erfolgt die Abnahme nahezu linear; je höher die Frequenz, desto mehr wird dieses lineare

Verhalten verlassen und desto mehr wird die maximale Änderung abgebaut. Dies ist wiederum vergleichbar mit den Resultaten bei gestörter Gemischzusammensetzung.

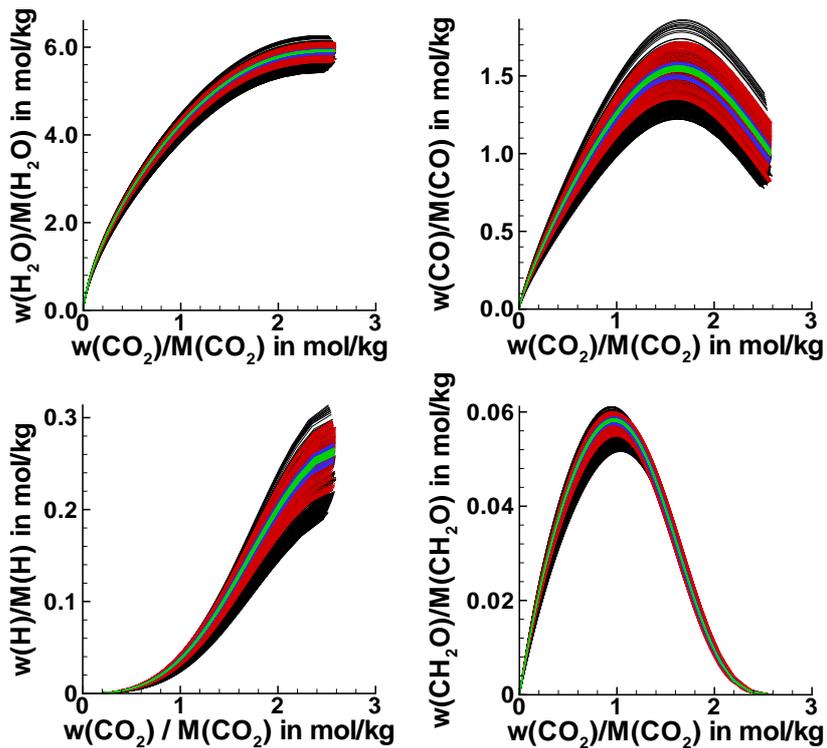
Die bisher gemachten Beobachtungen zum Verhalten der Störung können diverse Phänomene erklären:

- In [132] wurde gezeigt, dass die Amplitude der Flammenantwort mit zunehmender Frequenz abnimmt. Dies steht in direktem Zusammenhang mit dem bereits angesprochenen Abbau der Störungsamplitude auf dem Weg zur Flamme: Je höher die Frequenz, desto geringer die Amplitude, die bei der Flamme ankommt; entsprechend nimmt auch die Reaktion der Flamme ab.
- Hochfrequent gestörte Flammen können maximale Störungswerte ohne Löschung ertragen, die jenseits ihrer Löschgrenze im ungestörten Fall liegen [70]. Dies kann ebenfalls auf die dissipativen Prozesse zurückgeführt werden, die am Rand auftretende Störungsmaxima auf dem Weg zur Flamme verringern und so die ggf. zur Löschung führenden Maxima vor der Flamme abbauen.
- Mit zunehmender Frequenz nimmt die Zeitverzögerung zwischen Störung und Flammenreaktion zu [132]. Zurückzuführen ist dies auf die wellenförmige Bewegung der Störung, die bewirkt, dass der momentane Wert der Störung am Rand nicht dem momentanen Wert an der Flamme entspricht - ein Effekt, der sich mit zunehmender Frequenz und damit abnehmender Wellenlänge verstärkt. Damit ist auch keine instantane Reaktion der Flamme auf Störungswerte am Rand möglich.

### 7.3.2 Spezieskorrelationen im Zustandsraum

Nachdem das Verhalten der Störung untersucht wurde, muss die Reaktion der Flamme auf diese Störungen analysiert werden. Dabei können zunächst die sich zwischen einzelnen Spezies im Zustandsraum ergebenden Korrelationen verwendet werden, um erste Anhaltspunkte für die Reaktion der chemischen Kinetik auf die Störungen zu erhalten. Da sich für beide Störungsarten bei diesen Untersuchungen vergleichbare Resultate ergeben, wird hier nur die Störung der Gemisch-

zusammensetzung ausführlich diskutiert. Um die Analyse anschaulich zu gestalten, werden die Korrelationen der Spezies anhand zweidimensionaler Projektionen des  $(n_{spec} + 2)$ -dimensionalen Zustandsraumes untersucht; einige Beispiele sind in Abbildung 7.5 dargestellt. Eine Projektionskoordinate ist dabei immer das  $\text{CO}_2$ , welches eine adäquate Koordinate zur Beschreibung des Reaktionsfortschrittes ist [122]. Gezeigt wird die zeitliche Entwicklung der Spezieskorrelationen für un-



**Abbildung 7.5:** Ergebnisse von Flammenrechnungen mit zeitlich variiertem Strömungsfeld;  $\bar{J} = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ,  $\hat{J} = 0,50 \cdot \bar{J}$ ; Frequenzen 20 (schwarz), 250 (rot), 500 (blau), 1000 Hz (grün);  $\phi = 1,0$ . Aufgetragen ist die Strömungsgeschwindigkeit über der Ortskoordinate für verschiedene Zeitpunkte innerhalb einer vollen Störungsperiode.

terschiedliche Frequenzen (schwarz: 20 Hz, rot: 250Hz, blau: 500 Hz, grün: 1000 Hz), wobei jeweils eine volle Störungsperiode aufgetragen ist. Nochmals sei angemerkt, dass für die Berechnungen ein detailliertes Transportmodell ( $Le \neq 1$ , ungleiche Diffusivitäten) verwendet wurde. Für 20 Hz ergibt sich für jeden momentanen Störungswert eine charakteristische Korrelation zwischen den betrachteten Spezies und  $\text{CO}_2$  (Entsprechendes gilt außerdem auch für die nicht dargestellten Spezieskombinationen). Dies kann mit den Ergebnissen aus Kapitel 7.3.1

in Verbindung gebracht werden, die zeigen, dass bei niedrigen Frequenzen quasistationäre Werte der Störung an der Flamme ankommen. Die starke Streuung zwischen den einzelnen Korrelationen entspricht den von der Störung am Rand verursachten stark unterschiedlichen Äquivalenzverhältnissen; da zudem bei der niedrigen Frequenz die Amplitude kaum dissipativen Prozessen unterliegt (siehe Kapitel 7.3.1), entsteht eine starke Streuung zwischen den Spezieskorrelationen zu unterschiedlichen Zeitpunkten der Störung. Mit zunehmender Frequenz nimmt diese Streuung deutlich ab; bei 1000 Hz sind die Korrelationen schließlich eng gebündelt, entsprechend einer Kurve, die die Korrelation zwischen zwei Spezies zu jedem Zeitpunkt der Störung beschreibt. Erklärt werden kann dies wiederum mit der Ausbreitung der Störung: Je höher die Frequenz, desto mehr wird die Störungsamplitude vor der Flamme dissipiert. Die Flamme „sieht“ also immer geringere Ausschläge der Störung und zeigt entsprechend weniger Reaktion. Bei 1000 Hz wird die Flamme von einer nahezu vollständig auf den Mittelwert nivellierten Störung erreicht, es ergibt sich eine scharfe Spezieskorrelation. Berechnet man eine ungestörte Flamme mit einem dem Mittelwert entsprechenden Äquivalenzverhältnis, so erhält man die gleiche Spezieskorrelation. Da zudem auch die sich bei niedrigen Frequenzen ergebenden Korrelationen mit ungestörten Flammen entsprechender Äquivalenzverhältnisse reproduziert werden können, liegt der Schluß nahe, dass die chemische Kinetik von der Störung unbeeinflusst bleibt. Wie bereits oben erwähnt wurde, finden sich für das gestörte Strömungsfeld analoge Ergebnisse; auch hier zeigen sich Spezieskorrelationen, die den stationär sich einstellenden Korrelationen gleichen.

## 7.4 Zeitskalenanalysen im ILDM-Kontext

### 7.4.1 Vorgehensweise

Die vorgestellten Spezieskorrelationen lassen vermuten, dass beide Störungsarten keinen Einfluß auf das globale Verhalten der chemischen Kinetik ausüben. Um dies genauer zu überprüfen, werden Analysen der Zeitskalen der chemischen Kinetik eingesetzt; zunächst wird dabei auf einen bereits bekannten Algorithmus der Zeitskalenanalyse im Rahmen der ILDM-Methode zurückgegriffen. Einleitend sei dazu zunächst kurz die Bedeutung der Zeitskalen für Analysezwecke angespro-

chen. In Kapitel 3.1 wurden die Zeitskalen der chemischen Kinetik vorgestellt; insbesondere wurde angesprochen, dass sie einen großen Bereich an Zehnerpotenzen abdecken. Berechnet werden die Zeitskalen im Rahmen einer Eigenwertanalyse des chemischen Reaktionssystems, denn sie entsprechen den reziproken Beträgen der Eigenwerte der Jacobimatrix der chemischen Quellterme  $\mathbf{F}_\psi(\psi)$  [84]. Diese Eigenwerte geben Aufschlüsse über das Verhalten eines chemischen Systems nach einer Störung [84]; dies wurde bereits im Kapitel 3.2.1 diskutiert. Ebenso wurde bereits angesprochen, dass die Separation der Eigenwerte ein wesentliches Kriterium für die Identifikation langsamer und schneller Unterräume ist; das Eigenwertspektrum kann also genutzt werden, um Hinweise auf die Möglichkeit der Entkopplung schneller und langsamer Unterräume zu erhalten und um Aussagen über die Einsatzmöglichkeiten von niedrigdimensionalen ILDMs zu treffen (siehe Kapitel 3). Im Programmpaket INSFLA [83], [91], [122] ist eine entsprechende Analyseroutine vorhanden, mit der in einem post-processing aus einer vorhandenen Flammenrechnung die Zeitskalen lokal an jedem Punkt in der Flamme berechnet werden können. Eine weitere Analysemöglichkeit ist durch einen Relaxationsprozess gegeben, bei dem an jedem Punkt einer vorliegenden detaillierten Flammenrechnung die lokal notwendige Dimension einer ILDM (unter Vorgabe einer Fehlertoleranz) bestimmt sowie der dazugehörige Punkt auf einer ILDM dieser Dimension ermittelt werden kann. In [122] wird das Verfahren beschrieben; hier soll der umgesetzte Algorithmus zum besseren Verständnis der Resultate ebenfalls kurz dargestellt werden. Zwei Bedingungen stehen für den Relaxationsprozess zur Verfügung: Die Forderung, dass alle schnellen Prozesse bereits auf eine lokale ILDM relaxiert sind, und die Annahme, dass in Richtung der langsamen Eigenvektoren keine Veränderung stattfindet. Mit den bereits in Kapitel 3.2.1 eingeführten invarianten Unterräumen  $\tilde{\mathbf{Z}}_s(\psi)$  und  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi)$  ergibt sich dann:

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{Z}}_s(\psi) \cdot \Delta\psi &= \mathbf{0} \\ \tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi) \cdot \mathbf{F}(\psi) &= \mathbf{0}.\end{aligned}\tag{7.16}$$

Zur näherungsweisen Lösung dieses Gleichungssystems wird auf den zweiten Teil des Gleichungssystems das Newton-Verfahren angewendet:

$$(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi) \cdot \mathbf{F}(\psi))_\psi \cdot \Delta\psi = -(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\psi) \cdot \mathbf{F}(\psi)).\tag{7.17}$$

Weiter wird angenommen, dass  $\tilde{\mathbf{Z}}_f$  konstant (also keine Funktion von  $\psi$ ) ist; diese Annahme ist gerechtfertigt, da sich  $\tilde{\mathbf{Z}}_f$  über den Zustandsraum betrachtet

weniger ändert als  $\boldsymbol{\psi}$ , womit sich Gleichung (7.17) vereinfacht zu:

$$\tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}_{\boldsymbol{\psi}}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \Delta\boldsymbol{\psi} = -\tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}). \quad (7.18)$$

Berücksichtigt man die Zerlegung der Jacobimatrix (siehe Kapitel 3.2.1, Gleichung (3.2)), so ergibt sich:

$$\tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \Delta\boldsymbol{\psi} = -\mathbf{N}_f^{-1}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}). \quad (7.19)$$

Die Invertierbarkeit der Matrix  $\mathbf{N}_f(\boldsymbol{\psi})$  ist sichergestellt, da sie die schnellen Eigenwerte enthält, die nicht 0 werden. Zusammengefasst ergibt sich nun aus den Gleichungen (7.16) bis (7.19)

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{Z}}_s(\boldsymbol{\psi}) \cdot \Delta\boldsymbol{\psi} &= \mathbf{0} \\ \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \Delta\boldsymbol{\psi} &= -\mathbf{N}_f^{-1}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}), \end{aligned} \quad (7.20)$$

oder nach einigen Rechenschritten aufgelöst nach  $\Delta\boldsymbol{\psi}$ :

$$\Delta\boldsymbol{\psi} = -\mathbf{Z}_f \cdot \mathbf{N}_f^{-1}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}). \quad (7.21)$$

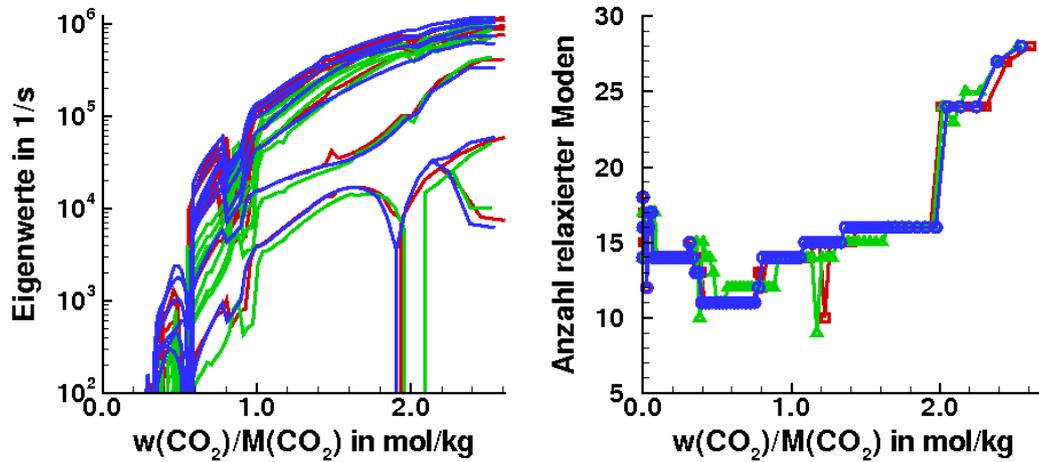
Diese Gleichung wird mit einem Pseudo-Zeitschrittverfahren iterativ gelöst, ausgehend von einem Zustand aus der detaillierten Flammenrechnung. Dabei werden die Iterationen nacheinander für alle möglichen Dimensionen einer ILDM<sup>37</sup> durchgeführt. Das Verfahren wird abgebrochen, wenn für eine bestimmte Dimension eine vorgegebene Fehlertoleranz  $\epsilon$  zwischen detaillierter Lösung und der mit der entsprechenden Dimension berechneten reduzierten Lösung überschritten wird. Ergebnis des Relaxationsprozesses ist schließlich die lokal niedrigstmögliche ILDM-Dimension sowie der zugehörige relaxierte Zustand auf einer ILDM der entsprechenden Dimension. Das Ergebnis wird nicht als ILDM-Dimension angegeben, sondern als Anzahl relaxierter Moden entsprechend der Anzahl Prozesse, die lokal vom System abgekoppelt werden<sup>38</sup>.

<sup>37</sup>Beginnend bei  $n_c = (n_{spec} + 2)$  entsprechend der detaillierten Lösung bis zur minimalen Dimension von  $n_c = (n_e + 2)$  entsprechend einer 0-dimensionalen Beschreibung.

<sup>38</sup>Die Systemdimension  $n$  ergibt abzüglich der Anzahl relaxierter Moden die Anzahl kontrollierender Variabler  $n_c = (n_e + 2 + n_s)$ , mit  $n_s$  als der Anzahl langsamer Prozesse entsprechend der ILDM-Dimension.

### 7.4.2 Ergebnisse der ILDM-basierten Zeitskalenanalysen

Bei der Auswahl der zu analysierenden Flammen wird auf die Ergebnisse des Kapitels 7.3.1 zurückgegriffen. Dort wird festgestellt, dass bei niedrigen Frequenzen aufgrund der hohen Wellenlänge der Störung und bei sehr hohen Frequenzen aufgrund diffusiver Prozesse an der Flamme nur quasistationäre Werte der Störung ankommen. Dies kann für die Analysen vereinfachend genutzt werden: Bei diesen Frequenzen sind Analysen der ungestörten Flammen mit entsprechenden Äquivalenzverhältnissen ausreichend; nur bei den Zwischenfrequenzen, bei denen nicht quasistationäre Störungswerte die Flamme erreichen, wird die instationäre Flamme zu unterschiedlichen Zeitpunkten untersucht (hier der Fall bei 500 Hz). Die Auswahl der Werte von Gemischzusammensetzung und Strömungsfeld für die analysierten ungestörten Flammen erfolgt so, dass die im Rahmen der gestörten Flamme als Maximal-, Minimal- und Mittelwert auftretenden Gemischzusammensetzungen beziehungsweise Werte des tangentialen Druckgradienten untersucht werden. Alle anderen Randbedingungen werden gegenüber dem gestörten Fall konstant gehalten, um eine direkte Übertragbarkeit der Resultate sicherzustellen. Bei den Flammen mit gestörter Gemischzusammensetzung treten die Äquivalenzverhältnisse  $\phi = 0,9, 1, 0$  und  $1, 1$  als Minimal-, Mittel- und Maximalwert auf; Analyseergebnisse der entsprechenden ungestörten Flammen sind in Abbildung 7.6 dargestellt. Im linken Teil der Abbildung sind zunächst die sich ergebenden Eigenwertspektren aufgetragen; dargestellt sind die Beträge der 15 größten Realanteile der Eigenwerte (insgesamt hat das Methan/Luft-System 36 Eigenwerte) für alle drei Äquivalenzverhältnisse. Es wurde eine logarithmische Auftragung gewählt, um die Separation der Eigenwerte besser sichtbar zu machen. Zu den nicht gezeigten Absolutwerten der Realanteile sei angemerkt, dass von den 15 Eigenwerten jeweils 6 gleich 0 sind (entsprechend den Erhaltungsprozessen im System: Druck, Enthalpie, vier Elemente) und dass von den anderen Eigenwerten maximal einer einen positiven Wert aufweist. Die anderen Eigenwerte befinden sich deutlich im negativen Bereich und können damit schnellen Relaxationsprozessen zugeordnet werden (siehe Kapitel 3.2.1). Abweichungen davon ergeben sich in den Bereichen um  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} < 0,6$  und  $\approx 2$  kg/mol, wo im Diagramm Ausschläge nach unten auftreten; hier werden jeweils einzelne Eigenwerte positiv. Für alle Äquivalenzverhältnisse ist ein global gleiches Verhalten der Eigenwerte aus dem Diagramm ablesbar. Insbesondere die Separation zwischen den Eigenwerten, die für eine Entkopplung langsamer Prozesse im Rahmen

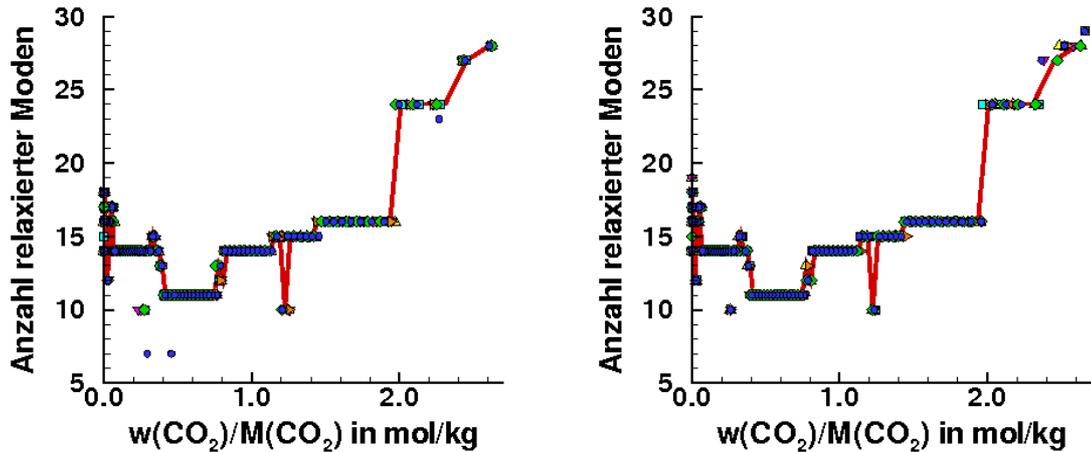


**Abbildung 7.6:** Ergebnisse von ILDM-basierten Analysen stationärer Flammen mit  $\phi = 1,0$  (rot),  $\phi = 0,9$  (grün) und  $\phi = 1,1$  (blau). Links: Realanteile der 15 größten Eigenwerte. Für die logarithmische Darstellung wurden die Realanteile mit dem gemeinsamen Faktor  $-1$  multipliziert. Rechts: Anzahl der relaxierten Moden mit  $\epsilon \leq 5\%$ .

von ILDM sehr wichtig ist, wird oberhalb von  $\text{CO}_2$ -Werten von ca.  $1,0$  mol/kg in ihrem qualitativen Verhalten nicht geändert. Dies lässt den Rückschluss zu, dass bei Flammen mit unterschiedlichen Äquivalenzverhältnissen (im hier betrachteten, kleinen Rahmen  $\phi = 0,9 \dots 1,1$ ) das globale Verhalten der Eigenwerte der chemischen Kinetik nicht beeinflusst wird. Die gleiche Aussage gilt für das globale Verhalten der Anzahl relaxierter Moden, was im Umkehrschluss bedeutet, dass sich bei einer reduzierten Beschreibung die Dimension einer ILDM durch eine Änderung des Äquivalenzverhältnisses nicht ändert. Allerdings ändert sich natürlich die Elementzusammensetzung, was in Form einer separaten Koordinate der ILDM berücksichtigt werden muss. Übertragen werden kann dieses Verhalten auf Flammen mit gestörter Gemischzusammensetzung, bei denen eine Störung der Gemischzusammensetzung in Form quasistationärer Werte ankommt (also bei niedrigen und hohen Frequenzen, siehe Kapitel 7.3.1).

Auch für die Störung des Strömungsfeldes sind Analysen stationärer Flammen von Interesse, um die Störungsbereiche abzudecken, bei denen die Flamme lediglich von quasistationären Werten erreicht wird. Derartige Analysen stationärer Flammen bei unterschiedlichen Werten der Streckung wurden in [122] durchgeführt, daher wird hier nicht näher darauf eingegangen. Es sei der Vollständigkeit halber angesprochen, dass sich bei der hier interessierenden Variation des tangentialen Druckgradienten das globale Verhalten der Eigenwerte und der relaxierten

Moden nicht ändert. Für die Flammen mit quasistationären Störungswerten gilt also beim gestörten Strömungsfeld die gleiche Schlussfolgerung wie bei der gestörten Gemischzusammensetzung: Das globale Verhalten der chemischen Kinetik bleibt unbeeinflusst, ebenso wie die lokal benötigte Dimension einer ILDM. Letztlich muss nun überprüft werden, wie sich diejenigen Flammen verhalten, bei denen die Störung nicht quasistationär ankommt. Nach den im Kapitel 7.3.1 vorgestellten Resultaten ist dies zum Beispiel bei einer Störungsfrequenz von 500 Hz der Fall. Für diese Frequenz wurden bei beiden Störungsformen Analysen zu unterschiedlichen Zeitpunkten der Störung (innerhalb einer Störungsperiode) durchgeführt. Es zeigt sich, dass auch hier keine Unterschiede im globalen Verhalten der Eigenwerte und der Anzahl relaxierter Moden zwischen den einzelnen Zeitpunkten auftreten. Für die relaxierten Moden ist dies in der Abbildung 7.7 beispielhaft gezeigt, links für die gestörte Gemischzusammensetzung, rechts für das gestörte Strömungsfeld. Als rote Linie dargestellt sind die relaxierten Moden für die stationäre Flamme, als farbige Symbole die relaxierten Moden für unterschiedliche Zeitpunkte. Es ist deutlich zu sehen, dass in beiden Störungsfällen glo-



**Abbildung 7.7:** Anzahl relaxierter Moden (ermittelt mit  $\epsilon \leq 5\%$ ) ungestörter und gestörter Flammen. Rote Linien: Relaxierte Moden einer ungestörten Flamme beim Mittelwert der entsprechenden gestörten Flamme. Farbige Symbole: Relaxierte Moden der gestörten Flamme zu unterschiedlichen Zeitpunkten innerhalb einer vollen Störungsperiode. Links: Ungestörte Flamme bei  $\phi = 1,0$  und Flamme mit Störung der Gemischzusammensetzung (500 Hz, 10% Amplitude). Rechts: Ungestörte Flamme mit  $J = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  und Flamme mit Störung des Strömungsfeldes (500 Hz, 50% Amplitude).

bal keine Änderung in der Anzahl der relaxierten Moden erfolgt. Damit bestätigt sich hier das Ergebnis der stationären Analysen sowie die aus den Untersuchungen von Spezieskorrelationen getroffenen Annahmen (siehe Kapitel 7.3.2), dass die hier untersuchten Störungen von Gemischzusammensetzung und Strömungsfeld keinen Einfluss auf das globale Verhalten der Chemie haben. Die Separation der Eigenwerte und damit auch die Anzahl relaxierter Moden beziehungsweise die lokal notwendige Dimension einer ILDM bleiben in sehr guter Näherung unverändert. Dies vereinfacht die Beschreibung der gestörten Flammen mit ILDMs deutlich, da lokal die gleiche Dimension eingesetzt werden kann. Jedoch sind zur notwendigen Dimension kritische Anmerkungen zu machen. Für alle untersuchten Flammen ergibt sich nur in einem sehr kleinen Bereich eine hohe Anzahl relaxierter Moden und damit eine entsprechend niedrige lokale Dimension einer ILDM, die das System im Rahmen der vorgegebenen Genauigkeit ( $\epsilon \leq 5\%$  für alle Spezies) beschreiben kann. Im restlichen, weit überwiegenden Gebiet der Flamme werden ILDMs hoher Dimension benötigt. Zur Erklärung dieses Problems sei zunächst auf die geringe Fehlertoleranz von  $\epsilon \leq 5\%$  zwischen detaillierter und reduzierter Lösung für alle Spezies hingewiesen. Dies führt dazu, dass der in Kapitel 7.4.1 beschriebene Iterationsprozess teilweise relativ früh abgebrochen wird, weil die Fehlertoleranz für Minoritätenspezies erreicht ist. Bei Anwendung einer entsprechenden Bedingung, die für Minoritätenspezies einen größeren Fehler zulässt oder aber bei Anwendung einer generell größeren Fehlertoleranz (vergleiche zum Beispiel die in [3] durchgeführte Zeitskalenanalyse für eine stationäre Methan/-Luft-Flamme mit einer Fehlertoleranz von  $\epsilon \leq 10\%$ ) könnte die lokale Dimension der ILDM erhöht werden. Dies würde aber auch einen entsprechenden Genauigkeitsverlust mit sich bringen. Andere Ursachen prinzipieller Art sind daher als wichtiger zu betrachten, wenn die niedrige Anzahl der relaxierten Moden erklärt werden soll: Zum einen die nur geringe Separation der Eigenwerte insbesondere in den kälteren Bereichen der Flamme, die eine Abtrennung von Unterräumen erschwert. Zum anderen tritt in diesen kälteren Bereichen eine hohe Anzahl langsamer chemischer Prozesse auf, die mit den physikalischen Prozessen koppeln. Entsprechend kann mit der ILDM-Methode nur eine unzureichende Reduktion erreicht werden. Eine bessere Entkopplung und damit eine Berechnung von niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten ist in solchen Bereichen einer Flamme nur möglich, wenn die physikalischen Prozesse in die Betrachtung einbezogen werden. Im nächsten Kapitel wird daher eine neue Analyse-Methode vorgestellt, die die Wechselwirkung physikalischer und chemischer Prozesse berücksichtigt.

## 7.5 Zeitskalenanalysen im REDIM-Kontext

Im vorhergehenden Kapitel wurde auf die Möglichkeit verwiesen, ein anderes Mannigfaltigkeitskonzept zur reduzierten Beschreibung der gestörten Flammen einzusetzen. Damit soll eine weitergehende Reduktion erreicht werden, als sie sich aus den vorgestellten ILDM-basierten Zeitskalenanalysen ergibt. Dazu wurden verschiedene Konzepte entwickelt<sup>39</sup>, die physikalische Prozesse bei der Berechnung niedrigdimensionaler Mannigfaltigkeiten berücksichtigen. Eine dieser Methoden ist die REDIM-Methode (Reaction Diffusion Manifolds, [27], [29], [30]). Diese lieferte bereits vielversprechende Ergebnisse bei Flammenrechnungen [27], [29], [30], wurde aber bisher nicht im Kontext gestörter Flammen eingesetzt. Insbesondere steht bisher auch noch kein Analysealgorithmus im Rahmen der Methode zur Verfügung, daher wird hier ein entsprechendes Modell vorgestellt [73].

### 7.5.1 Mathematisches Modell

Zunächst werden die wichtigsten Schritte für die Herleitung der REDIM-Gleichungen dargestellt [27]. Ausgangspunkt ist das System partieller Differentialgleichungen, das eine reagierende Strömung beschreibt (für eine genaue Diskussion siehe [146]):

$$\frac{\partial \boldsymbol{\psi}}{\partial t} = \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) - \mathbf{v} \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi}) - \frac{1}{\rho} \cdot \text{div}(\mathbf{D}(\boldsymbol{\psi}) \cdot \text{grad}(\boldsymbol{\psi})) = \boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi}). \quad (7.22)$$

Darin beschreibt  $\mathbf{v}$  die Strömungsgeschwindigkeit und  $\rho$  die Dichte.  $\mathbf{D}(\boldsymbol{\psi})$  ist die  $(n \times n)$ -dimensionale Matrix der Transportkoeffizienten (Koeffizienten für den Energie- und Speziestransport) [146]. Ziel ist es nun, eine invariante und attraktive Mannigfaltigkeit niedriger Dimension  $m_s$  im  $n$ -dimensionalen Zustandsraum zu finden, die in expliziter Schreibweise gegeben ist als:

$$M = \{\boldsymbol{\psi} = \boldsymbol{\psi}(\boldsymbol{\theta}); \boldsymbol{\theta} \in \mathbb{R}^n\}, \quad m_s \ll n, \quad (7.23)$$

mit  $\boldsymbol{\theta}$  als dem  $m_s = (n - n_f)$ -dimensionalen Vektor ( $n_f$ : Anzahl schneller Prozesse) der generalisierten Koordinaten (zu den generalisierten Koordinaten sei auf das Kapitel 3.5.2 verwiesen). Die durch Gleichung (7.23) gegebene Mannigfaltigkeit

<sup>39</sup>Für andere Reduktionsmethoden siehe Kapitel 2; mit der REDIM vergleichbare Methoden sind insbesondere dargestellt in [16], [40], [41], [48], [51], [53], [120], [121], [127], [128], [139].

kann in impliziter Form dargestellt werden; diese Form besagt, dass in einem Punkt der Mannigfaltigkeit der Term  $\Phi(\psi(\theta))$  normal ist zur Mannigfaltigkeit [27]:

$$(\psi_{\theta}^{\perp}(\theta))^T \cdot \Phi(\psi(\theta)) = \mathbf{0}. \quad (7.24)$$

$\psi_{\theta}^{\perp}(\theta)$  ist das orthogonale Komplement [54] des zur Mannigfaltigkeit tangentialen Unterraumes in einem Punkt  $\psi(\theta)$ . Gleichung (7.24) kann mittels des Projektionsoperators [27]

$$\mathbf{P}(\psi(\theta)) = \mathbf{I} - \psi_{\theta}(\theta) \cdot \psi_{\theta}^+(\theta) \quad (7.25)$$

in den zur Mannigfaltigkeit orthogonalen Raum projiziert werden und lautet dann:

$$(\mathbf{I} - \psi_{\theta}(\theta) \cdot \psi_{\theta}^+(\theta)) \cdot \Phi(\psi(\theta)) = 0. \quad (7.26)$$

Die Moore-Penrose-Pseudoinverse  $\psi_{\theta}^+(\theta)$  wird dabei entsprechend der in Kapitel 4.1 diskutierten Gleichung (4.7) berechnet [54]. Bei der Lösung des Gleichungssystems (7.26) muss beachtet werden, dass bei Abwesenheit diffusiver Prozesse jede Trajektorie des Reaktionssystems eine Lösung von (7.26) darstellt. Entsprechend würde man unendlich viele Lösungen erhalten. Da man jedoch nur an der langsamen Mannigfaltigkeit interessiert ist, wird gemäß [27] ein iterativer Lösungsalgorithmus verwendet, der sicherstellt, dass tatsächlich die langsame Mannigfaltigkeit gefunden wird. Als Ausgangspunkt für den Iterationsprozess wird eine Mannigfaltigkeit gewählt, die keine Lösung des Systems (7.26) ist. In [27] werden dafür lokal linear erweiterte ILDMs vorgeschlagen. Um ausgehend von dieser Startlösung den Iterationsprozess durchführen zu können, wird das System (7.26) in ein partielles Differentialgleichungssystem umgewandelt:

$$\frac{\partial \psi(\theta)}{\partial t} = (\mathbf{I} - \psi_{\theta}(\theta) \cdot \psi_{\theta}^+(\theta)) \cdot \Phi(\psi(\theta)). \quad (7.27)$$

Aus dem Iterationsprozess ergeben sich schließlich die stationären Lösungen  $\psi(\theta, \infty)$ , welche die Mannigfaltigkeit  $M$  bilden. Das Verfahren benötigt zur Berechnung des in  $\Phi(\psi(\theta))$  enthaltenen Transportterms als weiteren Input eine Abschätzung der lokalen Gradienten der generalisierten Koordinaten; zu Details hinsichtlich der Transporttermberechnung und der Gradientenabschätzung siehe [27].

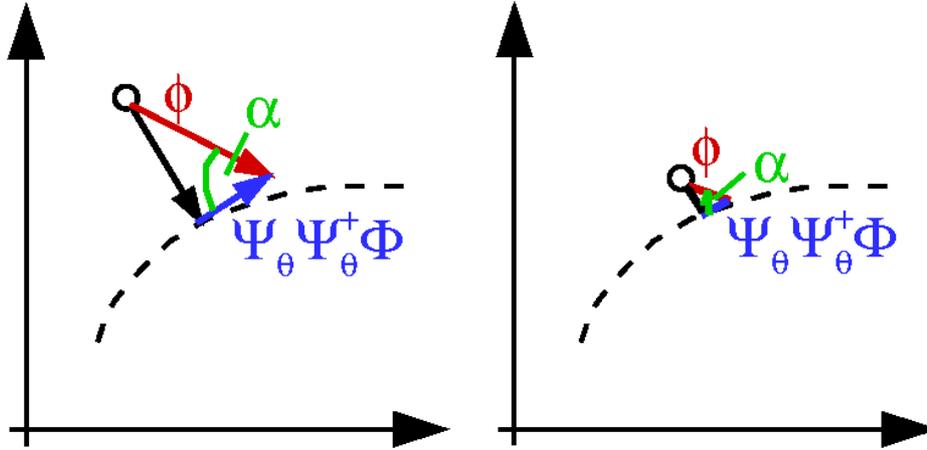
Basierend auf diesem REDIM-Verfahren soll nun ein Analysealgorithmus entwickelt werden. Dabei stehen wie bei der ILDM-Zeitskalenanalyse Lösungen von

Flammenrechnungen zur Verfügung; diese sollen auch Ausgangspunkt für die REDIM-Analyse sein. Grundsätzlich ist es möglich, einen der ILDM-Analyse (siehe Kapitel 7.4) entsprechenden Relaxationsprozess zu entwickeln, basierend auf der Lösung des Gleichungssystems:

$$\begin{aligned}\mathbf{X}_s(\boldsymbol{\psi}) \cdot \Delta\boldsymbol{\psi} &= \mathbf{0} \\ \mathbf{X}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi}) &= \mathbf{0}.\end{aligned}\tag{7.28}$$

Darin ist  $\mathbf{X}_s(\boldsymbol{\psi})$  eine  $(n_s \times n)$ -dimensionale Matrix, die die  $n_s$  langsamen Prozesse im System charakterisiert;  $\mathbf{X}_f(\boldsymbol{\psi})$  ist eine  $(n_f \times n)$ -dimensionale Matrix der schnellen Prozesse. Der Zustand  $\boldsymbol{\psi}$  ist jeweils eine Funktion der generalisierten Koordinaten  $\boldsymbol{\theta}$ ; wegen der besseren Übersichtlichkeit wird wieder auf die Darstellung dieser Funktionalität verzichtet. Ausgehend von einem beliebigen Zustand (hier erhalten aus der detaillierten Flammenrechnung) kann grundsätzlich mit dem Gleichungssystem (7.28) ein entsprechender Punkt auf einer lokalen REDIM berechnet werden, für den die schnellen Prozesse relaxiert sind (die langsamen Prozesse werden während des Relaxationsprozesses als eingefroren betrachtet). Problematisch ist dabei die Bestimmung des Terms  $\boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi})$ , genauer gesagt des in ihm enthaltenen Transportterms. Dieser wird, wie oben bereits angesprochen, beim REDIM-Verfahren mittels einer Gradientenabschätzung bestimmt. Während eines Relaxationsprozesses ist seine Bedeutung jedoch nicht eindeutig festzulegen. Damit ist es problematisch, lokal relaxierte Moden zu bestimmen. Zudem ist es bisher nicht möglich, REDIMs mit lokal adaptiver Dimension zu berechnen. Daher soll nicht ein Relaxationsprozess zur Analyse eingesetzt werden, sondern eine Größe definiert werden, die eine Abschätzung des Abstandes eines bestimmten Zustandes zu einer lokalen REDIM ermöglicht. Als angemessene Größe für diese Untersuchungen kann der in Abbildung 7.8 dargestellte Winkel  $\alpha$  angesehen werden. Er wird bestimmt durch die Prozesse gegeben durch  $(\boldsymbol{\psi}_\theta \cdot \boldsymbol{\psi}_\theta^+ \cdot \boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi}))$ , die die Dynamik entlang der Mannigfaltigkeit (gestrichelte Linie) bewegen, sowie durch die Prozesse  $\boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi}) = (\mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}) + \mathbf{D}(\boldsymbol{\psi}))$ , die sich sowohl aus Komponenten tangential als auch senkrecht zur Mannigfaltigkeit zusammensetzen. Für einen Zustand (Kreissymbol), der weit von der Mannigfaltigkeit entfernt ist (linke Seite der Abbildung) ergibt sich ein großer Winkel  $\alpha$ ; für einen Zustand nahe der Mannigfaltigkeit (rechte Seite der Abbildung) ist  $\alpha$  klein.  $\alpha$  ergibt sich als:

$$\cos \alpha = \frac{\boldsymbol{\Phi}^T(\boldsymbol{\psi}) \cdot (\boldsymbol{\psi}_\theta \cdot \boldsymbol{\psi}_\theta^+) \cdot \boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi})}{\|\boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi})\| \cdot \|(\boldsymbol{\psi}_\theta \cdot \boldsymbol{\psi}_\theta^+) \cdot \boldsymbol{\Phi}(\boldsymbol{\psi})\|}.\tag{7.29}$$



**Abbildung 7.8:** Schematische Darstellung einer Mannigfaltigkeit (gestrichelte Linie) und von Punkten im Zustandsraum mit großer (links) und kleiner Entfernung (rechts) zur Mannigfaltigkeit. Außerdem sind die für die Systemdynamik bestimmenden Prozesse und der Winkel  $\alpha$  eingetragen.

Dabei müssen die Terme  $\psi_\theta$ , die dem schnellen Unterraum entsprechen, jeweils für die interessierende REDIM-Dimension berechnet werden. Ist die lokale REDIM mit jeweiliger Dimension bekannt, so ist auch der schnelle Unterraum bekannt und damit die Berechnung des Winkels möglich. Hier jedoch sind die lokalen REDIMs nicht bekannt (auf die Schwierigkeit der Bestimmung lokaler REDIMs im Analysezusammenhang wurde bereits oben eingegangen); für den schnellen Unterraum muss daher eine Approximation verwendet werden. Diese Approximation wird basierend auf dem ILDM-Konzept vorgenommen. Unter Annahme einer bestimmten Dimension kann eine ILDM lokal an jedem zu analysierenden Punkt bestimmt werden (siehe Vorgehensweise bei der ILDM-Zeitskalenanalyse, Kapitel 7.4), damit ist auch der schnelle Unterraum (die zur Mannigfaltigkeit orthogonalen Terme) bekannt. Somit können die Terme  $\psi_\theta$  in Gleichung (7.29) angenähert werden durch:

$$\psi_\theta = (\tilde{Z}_f(\psi) \cdot \mathbf{F}(\psi))_\psi. \quad (7.30)$$

Dabei gehen in den Zustandsvektor  $\psi$  im Gegensatz zum ILDM-Konzept nicht nur die chemischen, sondern auch die physikalischen Prozesse ein, womit der Unterschied zwischen ILDM und REDIM in die Näherung eingeht. Dies stellt auch sicher, dass man tatsächlich die lokale REDIM und nicht die lokale ILDM betrachtet. Zur Berechnung der Ableitungen nach dem Zustandsvektor  $\psi$  werden

finite Differenzen verwendet (die Anwendung analytischer Differentiation wäre ebenfalls möglich). Beachtet werden muss, dass der schnelle invariante Unterraum  $\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi})$  der Jacobimatrix  $\mathbf{F}_\psi(\boldsymbol{\psi})$  - wie bereits in Kapitel 4.1 erwähnt - eventuell mit einer beliebigen Skalierung ausgegeben wird. Daher wird Gleichung (7.30) durch einen skalierungsinvarianten Ansatz ersetzt:

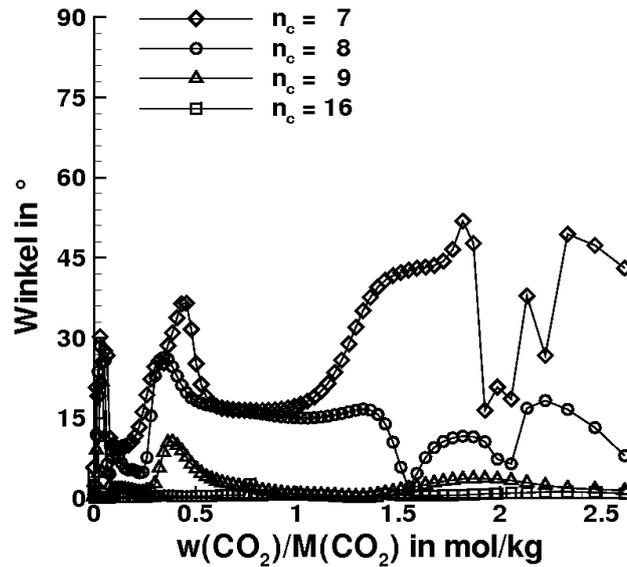
$$\boldsymbol{\psi}_\theta = (\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{K})^{-1} \cdot \tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{F}(\boldsymbol{\psi}); \quad (7.31)$$

dabei kann  $\mathbf{K}$  unter der Voraussetzung, dass das resultierende Produkt  $(\tilde{\mathbf{Z}}_f(\boldsymbol{\psi}) \cdot \mathbf{K})$  regulär ist, frei gewählt werden. Im vorliegenden Fall bietet sich die Wahl  $\mathbf{K} = \mathbf{Z}_f(0)$  an, also die Verwendung des schnellen rechten invarianten Unterraumes für den Ausgangszustand; dieser wird sowieso berechnet.

Mit der vorgestellten Näherung kann der Winkel  $\alpha$  für jeden Zustand der detaillierten Flammenlösung unter Vorgabe einer beliebigen REDIM-Dimension berechnet und ein Maß für die Entfernung der jeweiligen REDIM zur detaillierten Lösung gewonnen werden.

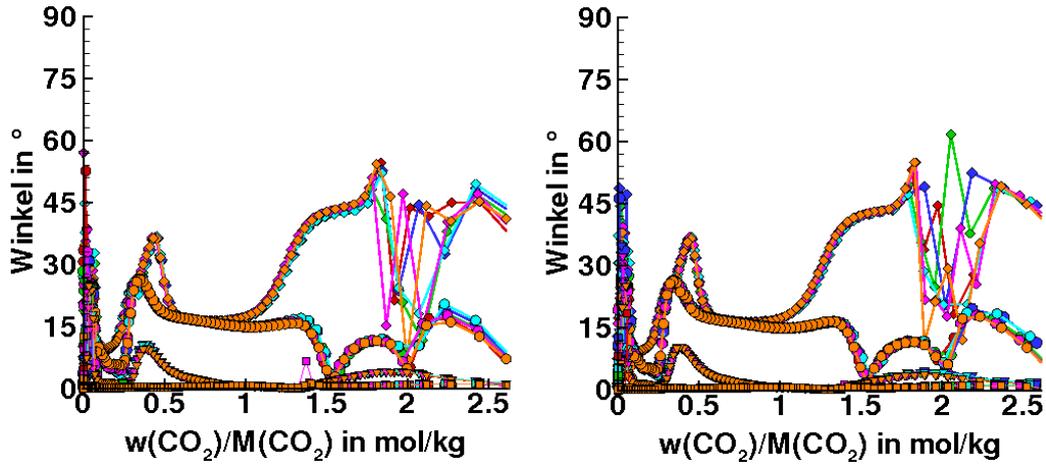
### 7.5.2 Ergebnisse der REDIM-basierten Zeitskalenanalysen

Zunächst soll auch bei der REDIM-Analyse der stationäre Fall untersucht werden; beispielhaft ist in Abbildung 7.9 der Winkel  $\alpha$  für die Flamme mit stöchiometrischer Gemischzusammensetzung und einem tangentialen Druckgradienten  $J = -1,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  dargestellt.  $\alpha$  wurde für eine verschiedene Anzahl kontrollierender Variabler berechnet (siehe Legende). Die Anzahl kontrollierender Variabler berechnet sich als  $n_c = (n_e + 2 + n_s)$ ;  $n_c = 7$  entspricht also einer Reaktionsfortschrittsvariablen oder der Dimension eins,  $n_c = 8$  der Dimension zwei usw.. Die Dimension 1 ergibt erwartungsgemäß den größten Winkel entsprechend einer großen Distanz von Zuständen in der Flamme zu einer 1d-REDIM ( $n_c = 7$ ). Es sei dabei angemerkt, dass der unregelmäßige Verlauf von  $\alpha$  im Bereich  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} > 1,7 \text{ mol/kg}$  durch entartete Eigenwerte entsteht; es handelt sich also um nicht reguläre Ergebnisse für  $\alpha$ . Für die 2d-REDIM ( $n_c = 8$ ) verkleinert sich der Winkel bereits deutlich und für die 3d-REDIM ( $n_c = 9$ ) ist  $\alpha$  sehr klein und zwar im gesamten untersuchten Zustandsbereich. Um einen Vergleich zu gewinnen, wie gut die Approximation mittels einer 3d-REDIM ist, wurde die Analyse auch für die sehr hohe Dimension von 10 ( $n_c = 16$ ) durchgeführt. Die nur



**Abbildung 7.9:** Winkel gemäß Gleichung (7.29) für eine stationäre Flamme mit  $\phi = 1,0$  und  $J = -0,8 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  bei verschiedener Anzahl kontrollierender Variabler (siehe Legende).

geringe weitere Absenkung des Winkels zeigt, dass eine 3d-REDIM bereits eine sehr gute Näherung im gesamten Bereich der Flamme darstellt. Sie scheint also einen guten Kompromiss zwischen sehr weitgehender Reduktion und dennoch großer Annäherung an das detaillierte Resultat darzustellen. Dies bestätigen erste Ergebnisse von Flammenrechnungen mit REDIMs, die mit der Dimension zwei durchgeführt wurden und gute Resultate ergaben (siehe [27], [30]). Für die anderen, bisher betrachteten Äquivalenzverhältnisse  $\phi = 0,9$  und  $\phi = 1,1$  ergibt sich im stationären Fall qualitativ das gleiche Verhalten, ebenso für stationäre Flammen mit abweichenden tangentialen Druckgradienten ( $J = -0,4 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$  und  $J = -1,2 \cdot 10^6 \text{ N/m}^4$ ). Wie bei der im vorhergehenden Kapitel diskutierten ILDM-basierten Analyse muss nun abgeklärt werden, ob sich das beschriebene Verhalten ändert, wenn mittlere Störungsfrequenzen untersucht werden (bei denen nicht quasistationäre Störungswerte die Flamme erreichen). Abbildung 7.10 zeigt die Ergebnisse für eine Störung der Gemischzusammensetzung (linke Seite) und eine Störung des Strömungsfeldes (rechte Seite), jeweils bei der Frequenz 500 Hz. Für beide Störungen werden bei gleichen Dimensionen wie zuvor unterschiedliche Zeitpunkte während einer vollen Störungsperiode untersucht. Es sei wieder darauf hingewiesen, dass Unregelmäßigkeiten im Verlauf (Bereich  $w_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2} > 1,7 \text{ mol/kg}$ ) von  $\alpha$  bei  $n_c = 7$  auf entartete Eigenwerte zurückzuführen



**Abbildung 7.10:** Winkel gemäß Gleichung (7.29) für Flammen unter Einfluss einer Störung der Gemischzusammensetzung (links; 500 Hz, 10% Amplitude) und des Strömungsfeldes (rechts, 500 Hz, 50% Amplitude) zu verschiedenen Zeitpunkten während einer Störungsperiode (verschiedene Farben) und unterschiedlicher Anzahl kontrollierender Variabler (Symbole wie in Abbildung 7.9).

ren sind. Deutlich ist zu erkennen, dass sich in beiden Fällen das gleiche globale Verhalten des Winkels ergibt wie im stationären Fall; zwischen den verschiedenen Zeitpunkten treten keine globalen Unterschiede auf. Auch im instationären Fall sind also mit REDIMs der Dimensionen zwei und drei gute Ergebnisse über den gesamten Zustandsbereich der Flamme zu erwarten.

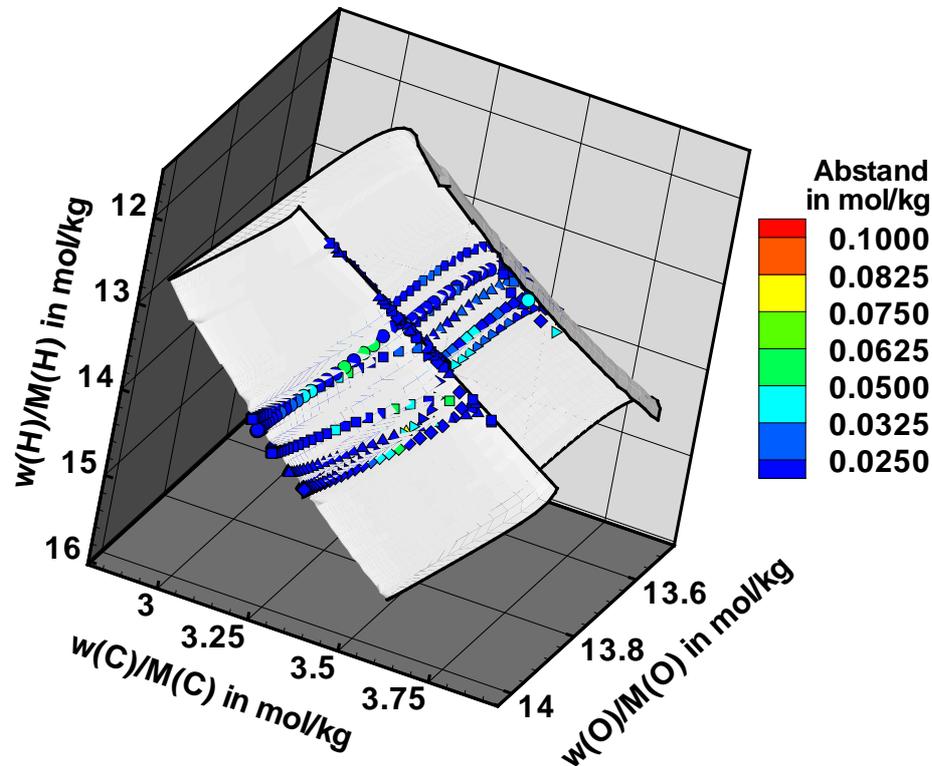
## 7.6 Elementzusammensetzung

Für die Bestimmung reduzierter Mechanismen ist neben der Dimension eine weitere Größe von entscheidender Bedeutung: Die Elementzusammensetzung. Sie entscheidet darüber, ob die entsprechenden Variablen in der Parametrisierung der ILDM als konstant angenommen werden können (siehe Kapitel 3.2.2) oder ob eine Änderung in der Elementzusammensetzung berücksichtigt werden muss. Insbesondere ist interessant, ob sich dabei für die gestörten Flammen eine Abweichung gegenüber stationären Flammen ergibt. Dazu wird untersucht, wieviele Korrelationen die Elementzusammensetzung in den gestörten Flammen beschreiben und ob sich dabei eine Änderung gegenüber einem Ensemble stationärer Flammen ergibt (etwa ein Verschwinden von Korrelationen). Geht man zunächst

von einer einzigen stationären Flamme aus, so kann die Elementzusammensetzung in dieser Flamme durch vier Korrelationen bestimmt werden, von denen drei direkt gegeben sind:

- Die Summe aller Elementmassenbrüche ergibt 1.
- Das Verhältnis von C und H in  $\text{CH}_4$  ist konstant.
- Das Verhältnis zwischen O und N in Luft ist konstant.

Mit der vierten Korrelation wird der Anteil von Brennstoff und Oxidationsmittel angegeben, zum Beispiel in Form des Äquivalenzverhältnisses. Weitere zwei Korrelationen sind notwendig, wenn ein Ensemble stationärer Flammen beschrieben werden soll. Ob dies im Fall einer Flamme mit gestörter Gemischzusammensetzung immer noch Gültigkeit besitzt, wird nun geklärt. Dazu werden eine Flamme mit gestörter Gemischzusammensetzung bei 500 Hz (siehe auch weiter oben) und diverse stationäre Flammen im Hinblick auf ihre Elementzusammensetzung verglichen. Berechnet werden zunächst die stationären Lösungen von 44 ungestörten Flammen mit Äquivalenzverhältnissen zwischen  $\phi = 0,88$  und  $\phi = 1,1$  (diese Äquivalenzverhältnisse werden auch durch die Störung verursacht) und aus diesen eine Lookup-Tabelle aufgebaut. Anschließend werden die Flammentrajektorien der gestörten Flamme zu unterschiedlichen Zeitpunkten mit den Einträgen der Tabelle verglichen. Dazu werden zu jedem Punkt der Flammentrajektorien zunächst die drei nächsten Nachbarn aus der Tabelle ausgewählt und schließlich der Abstand des Flammentrajektorienpunktes zu der von seinen nächsten Nachbarn aufgespannten Ebene bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.11 dargestellt. Die hellgraue Fläche stellt die zweidimensionale Korrelation der Elementzusammensetzung in den berechneten stationären Flammen dar, die farbigen Symbole zeigen die Abstände von Punkten auf den Flammentrajektorien der gestörten Flamme zu dieser Fläche; die Farblegende befindet sich in der Abbildung. Die Werte zeigen, dass die Abstände sehr gering sind. Das bedeutet, dass sich die Elementzusammensetzung in der gestörten Flamme mit guter Näherung innerhalb der von den stationären Flammen aufgespannten Korrelationen der Elementzusammensetzung bewegt. Es ist gut zu erkennen, dass infolge der Störung keine Änderung der Korrelationen beziehungsweise der Anzahl der Korrelationen erfolgt. Die Elementzusammensetzung in einer gestörten Flamme kann damit in guter Näherung durch die Elementzusammensetzungen in stationären Flammen



**Abbildung 7.11:** Vergleich der Elementzusammensetzungen in stationären Flammen (44 Flammen mit  $\phi = 0,88$  bis  $\phi = 1,1$ ; dargestellt als hellgraue Fläche mit schwarzem Rand) und in einer instationären Flamme mit einer Störung der Gemischzusammensetzung (500 Hz, Amplitude 10%; dargestellt als farbige Symbole). Die Farben geben den Abstand zur Fläche an, siehe Legende.

mit entsprechenden Äquivalenzverhältnissen beschrieben werden; diese können in einer Lookup-Tabelle hinterlegt werden. Diese Tabelle kann auch dazu dienen, den Einfluß einer Störung zu quantifizieren, indem die Abstände der Punkte der gestörten Flamme zu der von den stationären Flammen aufgespannten Fläche als Maß für die Auswirkung der Störung herangezogen werden.

Für die Flammen mit gestörtem Strömungsfeld sind Untersuchungen der Elementzusammensetzung ebenfalls von Interesse, da hier zwar keine direkte Veränderung der Stöchiometrie erfolgte, aber mit einem detaillierten Transportmodell mit  $Le \neq 1$  und ungleichen Diffusivitäten (siehe [84] zu den Auswirkungen eines detaillierten Transportmodells) gerechnet wurde. Daher wird das gleiche Vorgehen, das vorher beschrieben wurde, auch auf Flammen mit gestörtem Strö-

mungsfeld angewandt. In diesem Fall wird die Tabelle stationärer Flammen für ein gleichbleibendes Äquivalenzverhältnis, aber unterschiedliche Werte des tangentialen Druckgradienten  $J$  (siehe Gleichungen (7.6) und (7.7)) berechnet. Die Berechnungen der Abstände der gestörten Flammen zu den in dieser Tabelle enthaltenen Punkten ergeben ein vergleichbares Resultat, wie es für die Störung der Gemischzusammensetzung erhalten wurde.

## 7.7 Zusammenfassung

Vorgemischte gestreckte Methan/Luft-Gegenstromflammen wurden unter dem Einfluß periodischer Störungen der Gemischzusammensetzung und des Strömungsfeldes untersucht. Die Störung wurde dabei durch zeitabhängige Randbedingungen für die Spezies beziehungsweise den tangentialen Druckgradienten modelliert und die Rechnungen als Simulationen in einer Raumdimension mit detaillierter Chemie und detailliertem Transportmodell durchgeführt.

Zunächst wurde die Ausbreitung der Störung untersucht. Diese Ausbreitung erfolgt wellenförmig; auf dem Weg zur Flamme unterliegt die Amplitude der Störung diffusiven Prozessen. Bei sehr hohen Frequenzen wird dadurch gegebenenfalls die gesamte Amplitude nivelliert. Zudem ist das Verhältnis von Systemgröße und Wellenlänge der Störung von Bedeutung.

Bei den Untersuchungen zur Reaktion der Flamme auf Störungen stand die chemische Kinetik im Vordergrund. Dabei zeigt sich, dass in den gestörten Flammen auftretende Spezieskorrelationen mit den Korrelationen in ungestörten Flammen vergleichbar sind; auf diese Korrelationen hat die Störung keinen erkennbaren Einfluß. Weiterhin wurden Zeitskalenanalysen im Rahmen des ILDM- und des REDIM-Konzeptes für ungestörte und gestörte Flammen durchgeführt. Dabei zeigte sich im Hinblick auf eine Beschreibung der gestörten Flammen mit reduzierten Mechanismen keine Veränderung des globalen Verhaltens der chemischen Kinetik gegenüber dem ungestörten Fall. Schließlich ergab eine Betrachtung der Elementzusammensetzung in gestörten und ungestörten Flammen, dass sich die Korrelationen der Elementzusammensetzung im gestörten Fall nicht verändern. Als Strategie zur Beschreibung gestörter Flammen mit reduzierten Mechanismen wird basierend auf den vorgestellten Ergebnissen der Einsatz von REDIMs vorgeschlagen, da diese gegenüber ILDMs eine weitere Reduzierung der Dimension im

gesamten interessierenden Zustandsbereich ermöglichen. Für die Behandlung der Elementzusammensetzung in den gestörten Flammen ergab sich, dass eine Lookup-Tabelle der Elementzusammensetzungen in ungestörten Flammen eingesetzt werden kann. Handelt es sich um Berechnungen mit  $Le \neq 1$ , muss zusätzlich eine Tabellierungscoordinate für die Enthalpie eingesetzt werden.

Optimiert werden kann der Einsatz der reduzierten Mechanismen durch die Anwendung einer on-demand Generierung des reduzierten Mechanismus entsprechend dem in Kapitel 6 vorgestellten Algorithmus.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden reduzierte Reaktionsmechanismen basierend auf Intrinsischen Niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten (ILDMs, für Referenzen siehe das Kapitel 3) im Hinblick auf ihre Sensitivität gegenüber Änderungen der kinetischen Daten des detaillierten Mechanismus untersucht. Es wurde ein Verfahren zur Erweiterung der ILDMs in den Bereich der langsamen Chemie vorgestellt, sowie ein neues Implementierungsschema zur effizienten on-demand Generierung von ILDMs diskutiert. Flammen wurden unter dem Einfluß periodischer Störungen der Gemischzusammensetzung und des Strömungsfeldes analysiert; dabei wurde besonderer Wert auf die Untersuchung der Auswirkungen von Störungen auf die chemische Kinetik gelegt und ein neuer Algorithmus zur Analyse von Zeitskalen im Rahmen des Konzeptes der Reaktions-Diffusions-Mannigfaltigkeiten (REDIMs, Referenzen im Kapitel 7) entwickelt. Alle vorgestellten Algorithmen wurden in die Programmpakete INSFLA [83], [91] und HOM-REA [84] implementiert und anhand von Beispielrechnungen verifiziert.

Die Qualität reduzierter Mechanismen wie ILDMs hängt wesentlich vom zugrundeliegenden detaillierten Mechanismus ab, der seinerseits Ungenauigkeiten bei der Vermessung der kinetischen Daten unterworfen ist. Das in dieser Arbeit entwickelte Verfahren ermöglicht eine Untersuchung der Auswirkungen von Schwankungen in den detaillierten kinetischen Daten auf die resultierende ILDM mittels einer Sensitivitätsanalyse [71]; dabei erfolgt die Auswertung an jedem einzelnen Punkt der ILDM und ist sowohl qualitativ (Verteilung der Sensitivitäten über der ILDM und Richtung der Sensitivitäten) als auch quantitativ (welche Reaktionen sind sensitiv und wie stark?) möglich. Es ergibt sich eine Übereinstimmung

des Verhaltens von ILDM-Sensitivitäten und Ergebnissen von Sensitivitätsanalysen detaillierter Mechanismen. Die Sensitivitätsanalyse erlaubt nicht nur die Bestimmung der Sensitivitäten im Hinblick auf die kinetischen Daten einzelner Reaktionen, sie stellt auch eine alternative Möglichkeit für die Berechnung von ILDMs aus bereits vorhandenen ILDMs dar. So kann aus einer bereits vorhandenen ILDM und einer Sensitivitätsanalyse eine ILDM für geänderte kinetische Daten erzeugt werden.

Probleme bereitet die ILDM-Methode in den Regionen des Zustandsraumes, in denen viele chemische Prozesse langsam sind und daher mit der Physik in starker Wechselwirkung stehen. Sofern in diesen Bereichen überhaupt eine ILDM existiert, so ist sie von hoher Dimension. Eine lokal lineare Verlängerung niedrigdimensionaler ILDMs in den Bereich langsamer Chemie ist möglich [28], vernachlässigt aber die Dynamik der chemischen Prozesse und ist damit nur von eingeschränkter Genauigkeit. Daher wurden in dieser Arbeit hierarchisch erweiterte ILDMs [72] eingesetzt, die auf der hierarchischen Struktur von ILDMs [96], [99] beruhen. Ist die Grenze einer  $n_c$ -dimensionalen ILDM erreicht, so wird für ihre Verlängerung schrittweise die Dimension erhöht unter der zusätzlichen Bedingung, dass die Bewegung entlang der höherdimensionalen ILDM lokal linear in Richtung des Mischungspunktes erfolgt. Die hierarchisch erweiterten ILDMs beschreiben damit einen größeren Bereich des Zustandsraumes unter Berücksichtigung der chemischen Dynamik, werden aber trotzdem noch als  $n_c$ -dimensionale ILDM tabelliert; eine komplizierte Reorganisation des Speichers entfällt damit. Die hierarchisch erweiterten ILDMs sind auch optimal für die nachfolgende hierarchische Generierung höherdimensionaler ILDMs geeignet. Anhand diverser Flammenrechnungen für Synthesegas/Luft- und Methan/Luft-Flammen wurde gezeigt, dass der Algorithmus im Vergleich zum detaillierten Resultat für die meisten Spezies eine deutlich bessere Beschreibung ergibt als die rein lokal lineare Fortsetzung.

Bei der Implementierung von ILDMs in Flammenrechnungen bestanden bisher drei Probleme: Die Tabellierung erfolgte für den ganzen Bereich der Existenz der ILDM und umfasste daher einen wesentlich größeren Bereich als die tatsächlich von Flammenrechnungen erreichten Zustände einnehmen; damit wurden unnötig Speicherplatz und Rechenzeit benutzt. Zweitens wurden die Tabellen mit einer fixen, vor der Flammenrechnung festzulegenden Dimension generiert; es bestand keinerlei Möglichkeit, diese Dimension während der Flammenrechnung zu ändern. Dritter Problempunkt war die fehlende Fehlerkontrolle. Diese offenen Punkte kön-

---

nen mit einem on-demand Algorithmus behoben werden, der in dieser Arbeit entwickelt wurde [72]. Dabei wird die Tabelle während der Flammenrechnung aufgebaut und enthält damit nur Einträge, die auch tatsächlich benötigt werden. Zudem ermöglicht der Algorithmus nach Abschluss der ersten Flammenrechnung die automatische Generierung einer höherdimensionalen ILDM aus der on-demand erweiterten Tabelle und danach die Neuberechnung des Flammenresultats auf Basis dieser höherdimensionalen ILDM. Die erste Flammenrechnung wird als Startlösung verwendet, wodurch die zweite Rechnung schneller konvergiert und die Rechenzeit optimiert wird. Eine abschließende, automatische Fehlerkontrolle ermöglicht den Vergleich der beiden auf Basis von ILDM-Tabellen unterschiedlicher Dimension berechneten Flammenresultate; damit kann die Auswirkung der Dimensionsänderung bewertet werden. Der Algorithmus greift auf effiziente Verfahren bei der Generierung und beim Einsatz der ILDM-Tabellen zurück, darunter auf generalisierte Koordinaten [3], [4], hierarchische Generierung [96], [99] und hierarchische Erweiterung [72]. Durch diese Verfahren wird eine optimale Anpassung des ILDM-Gitters an den Reaktionsfortschritt erreicht. Zur Validierung des Algorithmus wurden Flammenrechnungen vorgestellt; eine deutliche Einsparung an Speicherplatz und Rechenzeit konnte dabei festgestellt werden. Die zur on-demand Generierung vorgestellten Algorithmen sind insbesondere für den Einsatz in mehrdimensionalen Simulationen turbulenter Flammen gedacht; mit zunehmender Komplexität des betrachteten Problems erhöht sich die Effizienz der Algorithmen.

Zukünftige Arbeiten an der on-demand Implementierung sollten eine Verwendung von REDIMs (siehe [27], [29], [30]) in Betracht ziehen, da sich dadurch die Qualität der Resultate im Bereich der langsamen Chemie weiter verbessern lässt. Dabei wäre es wünschenswert, auch für REDIMs zu untersuchen, ob und inwieweit eine hierarchische Generierung höherdimensionaler REDIMs aus einer bereits vorhandenen möglich ist. Unabhängig vom eingesetzten Mannigfaltigkeitskonzept (ILDM oder REDIM) wären weitere Schritte hin zu einer volladaptiven Tabellierung denkbar, die im Endeffekt eine lokale Anpassung der Mannigfaltigkeitsdimension erlaubt. Grundlage dafür ist die Implementierung einer online Fehlerkontrolle (Referenzen im Kapitel 6.1). Probleme sind bei der Speicherorganisation zu erwarten, weil Mannigfaltigkeiten unterschiedlichster Dimension gespeichert werden müssten. Da dies einen sehr hohen Aufwand darstellt, sollten zunächst weitere Untersuchungen zur lokal notwendigen Dimension beziehungsweise zu den Erfolgen einer lokalen Anpassung gemacht werden, um abschätzen

zu können, inwieweit dies überhaupt erforderlich ist.

Schließlich wurden noch Untersuchungen periodisch gestörter Methan/Luft-Gegenstromflammen mit dem Ziel durchgeführt, die Auswirkungen von periodischen Störungen der Gemischzusammensetzung und des Strömungsfeldes auf die chemische Kinetik in der Flamme zu klären [70], [73]. Solche Störungen werden in praktischen Verbrennungssystemen durch akustische Eigenschaften des Brenners oder seiner Zuleitungen verursacht und können schwerwiegende Schäden des Systems zur Folge haben. Anhand eindimensionaler laminarer Simulationen mit detaillierter Chemie und detailliertem Transportmodell wurde zunächst das Ausbreitungsverhalten der Störung vom Brenneraustritt hin zur Flamme untersucht. Dabei zeigte sich, dass sich die Störung wellenförmig ausbreitet. Bei niedrigen Frequenzen wird die Flamme lediglich von quasistationären Werten erreicht, da die Wellenlänge groß ist im Vergleich zu den Systemabmessungen. Zudem unterliegt die Störungsamplitude einem Abbau infolge diffusiver Prozesse; bei hohen Frequenzen kommt es sogar zur vollständigen Nivellierung der Amplitude vor der Flammenzone. Zum Flammenverhalten wurden Korrelationen verschiedener Spezies im Zustandsraum analysiert und zudem Zeitskalenanalysen im Rahmen des ILDM-Konzeptes durchgeführt; ein Einfluss der Störungen auf das globale Verhalten der chemischen Kinetik hinsichtlich einer Beschreibung der Flammen mit ILDMs konnte dabei nicht gefunden werden. Die Zeitskalenanalysen im Rahmen der ILDM-Methodik zeigen, dass gestörte Flammen zwar mit ILDMs beschrieben werden können, jedoch kann in einem großen Bereich des Zustandsraumes keine niedrigdimensionale ILDM gefunden werden. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Bereich der langsamen Chemie keine deutliche Separation zwischen langsamen und schnellen Prozessen mehr vorliegt. Dennoch ist es möglich, mittels eines anderen Mannigfaltigkeitskonzepts eine niedrigdimensionale Beschreibung für den Bereich langsamer Chemie zu finden. So ergab eine neue Methodik der Zeitskalenanalyse im Rahmen des Konzeptes REDIM, dass bei Berücksichtigung physikalischer Prozesse die Dimension einer Mannigfaltigkeit (einer REDIM) deutlich niedriger sein kann als die einer ILDM; eine Dimension von 3 scheint für erste Rechnungen angemessen. Untersuchungen der Elementzusammensetzung in gestörten Flammen zeigten, dass die Elementzusammensetzung in einer gestörten Flamme durch gleich viele Korrelationen bestimmt ist wie in einer stationären Flamme; damit kann die Elementzusammensetzung in der gestörten Flamme aus einer Tabelle stationärer Flammen entnommen werden. Als weitere Schritte bei der Untersuchung der gestörten Flammen sollten passende Tabellen

für die ILDMs oder REDIMs sowie die Elementzusammensetzung generiert und zur Berechnung der Flammen angewandt werden. Dabei ist es empfehlenswert, auf den hier vorgestellten on-demand Algorithmus zurückzugreifen, um Speicherplatzbedarf und Rechenzeit zu optimieren.



# Literaturverzeichnis

- [1] BASTIAANS, R. J. M. ; MARTIN, S. M. ; PITSCH, H. ; VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Flamelet Analysis of Turbulent Combustion. *Lecture notes in computer science* 3516 (2005), S. 64–71
- [2] BASTIAANS, R. J. M. ; VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Application of Flamelet Generated Manifolds and Flamelet Analysis of Turbulent Combustion. *International Journal on Multiscale Computational Engineering* 4 (2006), S. 307–317
- [3] BAUER, J.: *Effiziente Implementierung reduzierter Reaktionsmechanismen basierend auf intrinsischen niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten*, Universität Karlsruhe (TH), Dissertation, 2006
- [4] BAUER, J. ; MAAS, U.: Implementation of ILDMs Based on a Representation in Generalized Coordinates. In: *Proceedings of the 20th ICDERS, Montreal, Canada, 2005*. – ISBN 1-600490-01-8
- [5] BECKER, R. ; BRAACK, M. ; RANNACHER, R.: Numerical simulation of laminar flames at low Mach number by adaptive finite elements. *Combustion Theory and Modelling* 3(3) (1999), S. 503–534
- [6] BECKER, R. ; BRAACK, M. ; VEXLER, B.: Parameter Identification for chemical models in combustion problems. *Applied Numerical Mathematics* 54 (2005), S. 519–536
- [7] BECKER, R. ; RANNACHER, R.: An optimal control approach to a posteriori error estimation in finite element methods. *Acta Numerica* (2001), S. 1–102

- [8] BERRONE, S. ; CANUTO, C.: Multilevel a posteriori error analysis for reaction-convection-diffusion problems. *Applied Numerical Mathematics* 50 (2004), S. 371–394
- [9] BILGER, R. W. ; ESLER, M. B. ; STARNER, S. H. ; SMOOKE, M. D. (Hrsg.): *On reduced mechanisms for methane air combustion*. Bd. 5. Springer, Berlin, 1991
- [10] BLASCO, J. A. ; FUEYO, N ; DOPAZO, C. ; CHEN, J.-Y.: A self-organizing-map approach to chemistry representation in combustion applications. *Combustion Theory and Modelling* 4(1) (2000), S. 61–76
- [11] BLASENBREY, T.: *Entwicklung und Implementierung automatisch reduzierter Reaktionsmechanismen für die Verbrennung von Kohlenwasserstoffen*, Universität Stuttgart, Dissertation, 2000
- [12] BLASENBREY, T. ; MAAS, U.: ILDMs of Higher Hydrocarbons and the Hierarchy of Chemical Kinetics. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1623–1630
- [13] BLASENBREY, T. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U.: Automatically Simplified Chemical Kinetics and Molecular Transport and its Application in Premixed and Non-Premixed Laminar Flame Calculations. *Proceedings of the Combustion Institute* 27 (1998), S. 505–511
- [14] BLASENBREY, T. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U.: An improved tabulation strategy for reduced chemical kinetics based on ILDM. In: *Proceedings of the 17<sup>th</sup> ICDERS, Heidelberg*, 1999. – ISBN 3-932217-01-2
- [15] BODENSTEIN, M. ; LIND, S. C.: Geschwindigkeit der Bildung des Bromwasserstoffs aus seinen Elementen. *Zeitung für physikalische Chemie, Stöchiometrie und Verwandtschaftslehre* (1907), S. 168–192
- [16] BOGOLYUBOV, N. N. ; MITROPOLSKY, Y. A.: *Asymptotic Methods in the Theory of Nonlinear Oscillations*. Delhi : N. Y. Gordon and Breach, 1961
- [17] BONGERS, H. ; VAN OIJEN, A. ; DE GOEY, L. P. H.: Intrinsic low-dimensional manifold method extended with diffusion. *Proceedings of the Combustion Institute* 29 (2002), S. 1371–1378

- [18] BP: *BP Statistical Review of World Energy Consumption*, www.bp.com. 2007
- [19] BRAACK, M. ; ERN, A.: A posteriori control of modeling error and discretization errors. *Multiscale Modelling and Simulation* 1 (2003), S. 221–238
- [20] BRAACK, M. ; ERN, A.: Coupling multimodelling with local mesh refinement for the numerical computation of laminar flames. *Combustion Theory and Modelling* 8(4) (2004), S. 771–788
- [21] BUCKMASTER, J. ; ZHANG, Y.: Oscillating edge-flames. *Combustion Theory and Modelling* 3(3) (1999), S. 547–565
- [22] BUEKI, A. ; PERGER, T. ; TURANYI, T. ; MAAS, U.: Repro-Modelling Based Generation of Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. *Journal of Mathematical Chemistry* 31 (2002), S. 345–362
- [23] BYKOV, V.: *persönliche Mitteilung*
- [24] BYKOV, V. ; GOLDFARB, I. ; GOL'DSHTEIN, V. ; MAAS, U.: On a modified version of ILDM approach: asymptotic analysis based on integral manifolds. *IMA Journal of Applied Mathematics* 71 (2006), S. 359–382
- [25] BYKOV, V. ; GOL'DSHTEIN, V. ; MAAS, U.: Global Quasi Linearization (GQL) for the automatic reduction of chemical kinetics. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting, Chania, Crete, Greece*. 2007
- [26] BYKOV, V. ; MAAS, U.: Generation of reduced models by decoupling of chemical kinetics and convection/diffusion processes. In: *Proceedings of the 20th ICDEERS, Montreal, Canada, 2005*. – ISBN 1-600490-01-8
- [27] BYKOV, V. ; MAAS, U.: The extension of the ILDM concept to reaction-diffusion manifolds. *Combustion Theory and Modelling* 11(6) (2007), S. 839–862
- [28] BYKOV, V. ; MAAS, U.: Extension of the ILDM method to the domain of slow chemistry. *Proceedings of the Combustion Institute* 31(1) (2007), S. 465–472
- [29] BYKOV, V. ; MAAS, U.: Reduction of reacting flow models by the REDIM method. In: *Proceedings of the 21st ICDEERS, Poitiers, Frankreich*. 2007

- [30] BYKOV, V. ; MAAS, U.: Problem adapted reduced models based on Reaction-Diffusion Manifolds (ReDiMs). *Angenommen, 32nd International Symposium on Combustion* (2008)
- [31] CHEVALIER, C.: *Entwicklung eines detaillierten Reaktionsmechanismus zur Modellierung der Verbrennungsprozesse von Kohlenwasserstoffen bei Hoch- und Niedertemperaturbedingungen.*, Universität Stuttgart, Dissertation, 1993
- [32] CHO, J. H. ; LIEUWEN, T.: Laminar premixed flame response to equivalence ratio oscillations. *Combustion and Flame* 140(1-2) (2005), S. 116–129
- [33] CHRISTO, F. C. ; MASRI, A. R. ; NEBOT, E. M. ; TURANYI, T.: Utilising artificial neural network and repro-modelling in turbulent combustion. *Proceedings of the IEEE International Conference on Neural Networks 1* (1995), S. 911–916
- [34] CLARAMUNT, K. ; CONSUL, R. ; CARBONELL, D. ; PEREZ-SEGARRA, C. D.: Analysis of the laminar flamelet concept for nonpremixed flames. *Combustion and Flame* 145(4) (2006), S. 845–862
- [35] CONSUL, R. ; OLIVA, A. ; PEREZ-SEGARRA, C. D. ; CARBONELL, D. ; DE GOEY, L. P. H.: Analysis of the laminar flamelet concept in the numerical simulation of partially premixed flames. *Combustion and Flame* 153(1-2) (2008), S. 71–83
- [36] CORREA, C. ; NIEMANN, H. ; SCHRAMM, B. ; WARNATZ, J.: Reaction Mechanism Reduction for Higher Hydrocarbons by the ILDM Method. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1607–1614
- [37] CORREA, C. ; NIEMANN, H. ; SCHRAMM, B. ; WARNATZ, J.: Reaction mechanism reduction for higher hydrocarbons by the ILDM method. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1607–1614
- [38] DARABIHA, N.: Transient behaviour of laminar counterflow hydrogen-air diffusion flames with complex chemistry. *Combustion Science and Technology* 86(1-6) (1992), S. 163–181

- [39] DARABIHA, N. ; CANDEL, S. ; WIRTH, D. A. ; MAHAN, J. R.: Numerical studies of a pulsing burner stabilized laminar premixed methane-air flame. *Combustion Science and Technology* 113(1) (1996), S. 35–47
- [40] DAVIS, M. J.: Low-Dimensional Manifolds in Reaction-Diffusion Equations. 1. Fundamental Aspects. *Journal of Physical Chemistry A* 110(16) (2006), S. 5235–5256
- [41] DAVIS, M. J.: Low-Dimensional Manifolds in Reaction-Diffusion Equations. 2. Numerical Analysis and Method Development. *Journal of Physical Chemistry A* 110(16) (2006), S. 5257–5272
- [42] DAVIS, M. J. ; SKODJE, R. T.: Geometric Investigation of Low-Dimensional Manifolds in Systems Approaching Equilibrium. *Journal of Chemical Physics* 111(3) (1999), S. 859–874
- [43] DE GOEY, L. P. H. ; TEN THIJE BOONKAMP, J. H. M.: A flamelet description of premixed laminar flames and the relation with flame stretch. *Combustion and Flame* 119(3) (1999), S. 253–271
- [44] DELHAYE, S. ; SOMERS, L. M. T. ; VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Incorporating unsteady flow-effects in Flamelet-Generated Manifolds. *Combustion and Flame* N.N. (2008)
- [45] DEUFLHARD, P. ; HAIRER, E. ; ZUGCK, J.: One-Step and Extrapolation Methods for Differential-Algebraic Systems. *Numerische Mathematik* 51 (1987), S. 501–516
- [46] DEUFLHARD, P. ; NOWAK, U. ; DEUFLHARD, P. (Hrsg.) ; ENQUIST, B. (Hrsg.): *Extrapolation Integrators for Quasilinear Implicit ODEs..* Bd. 7. Boston, Basel, Stuttgart : Birkhaeuser, 1987
- [47] EGGELS, R. L. G. M. ; DE GOEY, L. P. H.: Mathematically reduced reaction mechanisms applied to adiabatic flat hydrogen/air flames. *Combustion and Flame* 100(4) (1995), S. 559–570
- [48] FENICHEL, N.: Geometric singular perturbation theory for ordinary differential equations. *Journal of Differential Equations* 31(1) (1979), S. 53–98

- [49] FERREIRA, J. C. ; BENDER, R. ; FORKEL, H.: A presumed PDF-ILDM model for the CFD-analysis of turbulent combustion. *Progress in Computational Fluid Dynamics* 5(6) (2005), S. 327–333
- [50] FLEIFIL, M. ; ANNASWAMY, A. M. ; GHONHEIM, Z. A. ; GHONIEM, A. F.: Response of a laminar premixed flame to flow oscillations: A kinematic model and thermoacoustic instability results. *Combustion and Flame* 106(4) (1996), S. 487–510
- [51] GICQUEL, O. ; DARABIHA, N. ; THEVENIN, D.: Laminar Premixed Hydrogen/Air Counterflow Flame Simulations Using Flame Prolongation of ILDM with Differential Diffusion. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1901–1908
- [52] GICQUEL, O. ; THEVENIN, D. ; HILKA, M. ; DARABIHA, N.: Direct Numerical Simulation of Turbulent Premixed Flames using Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. *Combustion Theory and Modelling* 3(3) (1999), S. 479–502
- [53] GOLDSHTEIN, V. ; SOBOLEV, V.: Integral manifolds in chemical kinetics and combustion. *Singularity theory and some problems of functional analysis*, American Mathematical Society (1992), S. 73–92
- [54] GOLUB, G. H. ; VAN LOAN, C. F.: *Matrix Computations*. Baltimore - London : The Hopkins University Press, 1989
- [55] GORBAN, A. N. ; KARLIN, I. V.: Method of invariant manifold for chemical kinetics. *Chemical Engineering Science* 58(21) (2003), S. 4751–4768
- [56] GOUSSIS, D. A. ; LAM, S. H.: A Study of homogeneous methanol oxidation kinetics using CSP. *Proceedings of the Combustion Institute* 24 (1992), S. 113–120
- [57] GRIFFITHS, J. F.: Reduced kinetic models and their application to practical combustion systems. *Progress in Energy and Combustion Science* 21(1) (1995), S. 25–107
- [58] GÜNTHER, R.: 50 Jahre Wissenschaft und Technik der Verbrennung. *BWK* 39(9) (1987)

- [59] HADJINICOLAOU, M. ; GOUSSIS, D. A.: Asymptotic Solutions of Stiff PDEs with the CSP method: the Reaction Diffusion Equation. *SIAM Journal of Scientific Computing* 20 (1999), S. 781–910
- [60] HESSTVEDT, E. ; HOV, O. ; ISAKSEN, I.: Quasi-steady-state approximations in air pollution modeling: Comparison of two numerical schemes for oxidant prediction. *International Journal of Chemical Kinetics* 10(9) (1978), S. 971–994
- [61] HUANG, H. ; FAIRWEATHER, M. ; GRIFFITHS, J. F. ; TOMLIN, A. S. ; BRAD, R. B.: A systematic lumping approach for the reduction of comprehensive kinetic models. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 1309–1316
- [62] HUANG, Z. ; BECHTOLD, J. K. ; MATALON, M.: Weakly stretched premixed flames in oscillating flows. *Combustion Theory and Modelling* 2(2) (1999), S. 115–133
- [63] IM, H. G. ; LAW, C. K. ; KIM, J. S. ; WILLIAMS, F. A.: Response of counterflow diffusion flames to oscillating strain rates. *Combustion and Flame* 100(1-2) (1995), S. 21–30
- [64] INTERNATIONAL ENERGY AGENCY: *World Energy Outlook 2005*, [www.worldenergyoutlook.com](http://www.worldenergyoutlook.com). 2005
- [65] INTERNATIONAL ENERGY AGENCY: *Zusammenfassung des World Energy Outlook 2007*, [www.worldenergyoutlook.com](http://www.worldenergyoutlook.com). 2007
- [66] JONES, W. P. ; RIGOPOULOS, S.: Reduction of comprehensive chemistry via constraint potentials. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 1325–1331
- [67] JONES, W. P. ; RIGOPOULOS, S.: Reduced chemistry for hydrogen and methanol premixed flames via RCCE. *Combustion Theory and Modelling* 11(5) (2007), S. 755–780
- [68] JOULIN, G. ; CAMBRAY, P. ; JAOUEN, N.: On the response of a flame ball to oscillating velocity gradients. *Combustion Theory and Modelling* 6(1) (2002), S. 53–78

- [69] KECK, J. C.: Rate-controlled constrained-equilibrium theory of chemical reactions in complex systems. *Progress in Energy and Combustion Science* 16(2) (1990), S. 125–154
- [70] KÖNIG, K. ; MAAS, U.: Investigation of the dynamics of periodically perturbed counterflow flames. In: *Proceedings of the European Combustion Meeting, Louvain-la-Neuve, Belgium*. 2005
- [71] KÖNIG, K. ; MAAS, U.: Sensitivity of intrinsic low-dimensional manifolds with respect to kinetic data. *Proceedings of the Combustion Institute* 30(1) (2005), S. 1317–1323
- [72] KÖNIG, K. ; MAAS, U.: On-Demand Generation of Reduced Mechanisms based on Hierarchically Extended Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Generalized Coordinates. *Angenommen, Proceedings of the 32nd International Symposium on Combustion* (2008)
- [73] KÖNIG, K. ; V., Bykov. ; MAAS, U.: Investigation of the dynamical response of methane-air counterflow flames to inflow mixture composition and flow field perturbations. *Eingereicht zur Veröffentlichung bei Flow, Turbulence and Combustion* (2008)
- [74] KORNILOV, V. N. ; SCHREEL, K. R. A. M. ; DE GOEY, L. P. H.: Experimental Assessment of the Acoustic Response of Laminar Premixed Bunsen Flames. *Proceedings of the Combustion Institute* 31 (2007), S. 1239–1246
- [75] LAM, S. H.: Using CSP for Complex Chemical Kinetics. *Technical Report 1941-MAE, Princeton University* (1992)
- [76] LAM, S. H. ; GOUSSIS, D. A.: Understanding Complex Chemical Kinetics with Computational Singular Perturbation. *Proceedings of the Combustion Institute* 22 (1988), S. 931–941
- [77] LEE, J. C. ; NAJM, H. N. ; LEFANTZI, S. ; RAY, J. ; FRENKLACH, M. ; VALORANI, M. ; GOUSSIS, D. A.: A CSP and tabulation-based adaptive chemistry model. *Combustion Theory and Modelling* 11(1) (2007), S. 73–102
- [78] LI, G. ; ROSENTHAL, C. ; RABITZ, H.: High Dimensional Model Representations. *Journal of Physical Chemistry A* 105(33) (2001), S. 7765–7777

- [79] LIEUWEN, T. ; NEUMEIER, Y. ; ZINN, B. T.: The Role of Unmixedness and Chemical Kinetics in Driving Combustion Instabilities in Lean Premixed Combustors. *Combustion Science and Technology* 135(1) (1998), S. 193–211
- [80] LIPP, S. ; MAAS, U.: Simulation of Premixed Swirling Flames Using a Hybrid Finite-Volume/Transported PDF Approach. In: RESCH, M. (Hrsg.) ; ROLLER, S. (Hrsg.) ; LAMMERS, P. (Hrsg.) ; FURUI, T. (Hrsg.) ; BEZ, W. (Hrsg.): *High Performance Computing on Vector Systems 2007*. HLRS, Stuttgart, 2007, S. 181–193
- [81] LU, T. ; JU, Y. ; LAW, C. K.: Complex CSP for chemistry reduction and analysis. *Combustion and Flame* 126(1-2) (2001), S. 1445–1455
- [82] LU, T. ; LAW, C. K.: A directed relation graph method for mechanism reduction. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 1333–1341
- [83] MAAS, U.: *Mathematische Modellierung instationärer Verbrennungsprozesse unter Verwendung detaillierter chemischer Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 1988
- [84] MAAS, U.: *Automatische Reduktion von Reaktionsmechanismen zur Simulation reaktiver Strömungen*. Universität Stuttgart, Habilitationsschrift. (1994)
- [85] MAAS, U.: Coupling of Chemical Reaction with Flow and Molecular Transport. *Applications of Mathematics* 3 (1995), S. 249–266
- [86] MAAS, U.: Efficient Calculation of Intrinsic Low-Dimensional Manifolds for the Simplification of Chemical Kinetics. *Computing and Visualization in Science* 1(2) (1998), S. 69–82
- [87] MAAS, U.: Mathematical Modeling of the Coupling of Chemical Kinetics With Laminar and Turbulent Transport Processes. In: *Proceedings of the 1st MIT Conference*, Elsevier, Amsterdam, 2001, S. 1304–1308
- [88] 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

- [89] MAAS, U. ; POPE, S. B.: Simplifying Chemical Kinetics: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space. *Combustion and Flame* 88(3-4) (1992), S. 239–264
- [90] MAAS, U. ; POPE, S. B.: Simplifying Chemical Kinetics: Trajectory-Generated Low-Dimensional Manifolds. *FDA 93-11, Cornell University* (1993)
- [91] MAAS, U. ; POPE, S. B.: Laminar Flame Calculations using Simplified Chemical Kinetics Based on Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. *Proceedings of the Combustion Institute* 25 (1994), S. 1349–1356
- [92] MAAS, U. ; POPE, S. B.: Laminar Flame Calculations using Simplified Chemical Kinetics Based on Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. *Proceedings of the Combustion Institute* 25 (1994), S. 1349–1356
- [93] MAAS, U. ; WARNATZ, J.: Ignition Processes in Hydrogen-Oxygen Mixtures. *Proceedings of the Combustion Institute* 22 (1988), S. 1675–1704
- [94] METZENER, P. ; MATALON, M.: Diffusive-thermal instabilities of diffusion flames: onset of cells and oscillations. *Combustion Theory and Modelling* 10(4) (2006), S. 701–725
- [95] MILLER, J. A. ; PILLING, M. J. ; TROE, J.: Unravelling combustion mechanisms through a quantitative understanding of elementary reactions. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 43–88
- [96] NAFE, J.: *Effiziente Generierung reduzierter Reaktionsmechanismen basierend auf intrinsischen niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeiten*, Universität Stuttgart, Dissertation, 2003
- [97] NAFE, J. ; MAAS, U.: A general algorithm for improving ILDMs. *Combustion Theory and Modelling* 6(4) (2002), S. 697–709
- [98] NAFE, J. ; MAAS, U.: Modeling of NO-Formation Based on ILDM Reduced Chemistry. *Proceedings of the Combustion Institute* 29 (2002), S. 1379–1385
- [99] NAFE, J. ; MAAS, U.: Hierarchical Generation of ILDMs of Higher Hydrocarbons. *Combustion and Flame* 135(1-2) (2003), S. 17–26

- [100] NAFE, J. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U.: Reduzierte kinetische Modelle für die Beschreibung turbulenter Verbrennungsprozesse. *VDI-Berichte* 1664 (2002), S. 1–10
- [101] NAUD, B. ; MERCI, B. ; ROEKAERTS, D. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U.: Scalar PDF and velocity-scalar PDF modelling of the bluff-body stabilised flame HM1 using ILDM. *Proceedings of the 5th Symposium on Turbulence, Mass and Heat Transfer* (2006)
- [102] NIEMANN, H.: *Niedrigdimensionale Modellierung Dynamischer Systeme am Beispiel reduzierter Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 2002
- [103] NOOREN, P. A. ; WOUTERS, H. A. ; PEETERS, T. W. J. ; ROEKAERTS, D. ; MAAS, U. ; SCHMIDT, D.: Monte Carlo PDF modelling of a turbulent natural-gas diffusion flame. *Combustion Theory and Modelling* (1997), S. 79–96
- [104] ODEN, J. T. ; BABUSKA, I. ; NOBILE, F. ; FENG, Y. ; TEMPONE, R.: Theory and methodology for estimation and control of errors due to modeling, approximation, and uncertainty. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 194 (2005), S. 195–204
- [105] ODEN, J. T. ; PRUDHOMME, S.: Estimation of Modeling Error in Computational Mechanics. *Journal of Computational Physics* 182 (2002), S. 496–515
- [106] OLUWOLE, O. O. ; BARTON, P. I. ; GREEN, W. H.: Obtaining accurate solutions using reduced chemical kinetic models: a new model reduction method for models rigorously validated over ranges. *Combustion Theory and Modelling* 11(1) (2007), S. 127–146
- [107] PETERS, N. ; GLOWINSKI, R. (Hrsg.) ; LARROUTUROU, B. (Hrsg.) ; TEMAM, R. (Hrsg.): *Numerical and Asymptotic Analysis of systematically reduced reaction schemes for hydrocarbon flames*. Bd. 241, S. 90–109. Springer, Berlin, 1985
- [108] PETERS, N.: Systematic Reduction of flame kinetics: principles and details. *Progress in Astronautics and Aeronautics* (1988), S. 67–86

- [109] PETERS, N. ; WILLIAMS, F. A.: The asymptotic structure of stoichiometric methane-air flames. *Combustion and Flame* 68(2) (1987), S. 185–207
- [110] POPE, S. B.: Application of trajectory-generated low-dimensional manifold method to premixed combustion of methane. *FDA 93-10, Cornell University* (1993)
- [111] POPE, S. B.: Computationally efficient implementation of combustion chemistry using in situ adaptive tabulation. *Combustion Theory and Modelling* 1(1) (1997), S. 41–63
- [112] RANZI, E. ; DENTE, M. ; GOLDANIGA, A. ; BOZZANO, G. ; FARAVELLI, T.: Lumping procedures in detailed kinetic modeling of gasification, pyrolysis, partial oxidation and combustion of hydrocarbon mixtures. *Progress in Energy and Combustion Science* 27(1) (2001), S. 99–139
- [113] REN, Z. ; POPE, S. B.: Species reconstruction using pre-image curves. *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (2005), S. 1293–1300
- [114] REN, Z. ; POPE, S. B.: The use of slow manifolds in reactive flows. *Combustion and Flame* 147(4) (2006), S. 243–261
- [115] REN, Z. ; POPE, S. B. ; VLADIMIRSKY, A. ; GUCKENHEIMER, J. M.: The invariant constrained equilibrium edge pre-image curve method for the dimension reduction of chemical kinetics. *Journal of Chemical Physics* 124(11) (2006), S. 1–15, Paper-Nummer 114111
- [116] REN, Z. ; POPE, S. B. ; VLADIMIRSKY, A. ; GUCKENHEIMER, J. M.: Application of the ICE-PIC method for the dimension reduction of chemical kinetics coupled with transport. *Proceedings of the Combustion Institute* 31 (2007), S. 473–481
- [117] RIEDEL, U. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U. ; WARNATZ, J.: *Laminar Flame Calculations Based on Automatically Simplified Chemical Kinetics*. Proceedings of the 35<sup>th</sup> Eurotherm Seminar, Compact Fired Heating Systems, Leuven, Belgium, 1994
- [118] ROOK, P. ; DE GOEY, L. P. H. ; SOMERS, L. M. T. ; SCHREEL, K. R. A. M. ; PARCHEN, R.: Response of burner-stabilized flat flames to acoustic perturbations. *Combustion Theory and Modelling* 6(2) (2002), S. 223–242

- [119] ROUSSEL, M. R. ; FRASER, S. J.: Geometry of the Steady-State Approximation: Perturbation and Accelerated Convergence Methods. *Journal of Chemical Physics* 93(2) (1990), S. 1072–1081
- [120] ROUSSEL, M. R. ; FRASER, S. J.: Global analysis of enzyme inhibition kinetics. *Journal of Physical Chemistry* 97(31) (1993), S. 8316–8327
- [121] ROUSSEL, M. R. ; FRASER, S. J.: Invariant manifold methods for metabolic model reduction. *Chaos* 11 (2001), S. 196–206
- [122] SCHMIDT, D. ; BLASENBREY, T. ; MAAS, U.: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds of Strained and Instrained Flames. *Combustion Theory and Modelling* 2(2) (1998), S. 135–152
- [123] SCHMIDT, D. ; MAAS, U. ; WARNATZ, J.: Simplifying Chemical Kinetics for the Simulation of Hypersonic Flows using Intrinsic Low-Dimensional Manifolds. In: *Proceedings of the 5th International Symposium on Computational Fluid Dynamics*. Sendai, Japan, 1993
- [124] SCHMIDT, D. ; SEGATZ, J. ; RIEDEL, U. ; WARNATZ, J. ; MAAS, U.: Simulation of Laminar Methane-Air Flames using Automatically Simplified Chemical Kinetics. *Combustion Science and Technology* 113(1) (1996), S. 3–16
- [125] SCHMIDT, D. ; XIAO, K. ; MAAS, U.: Implementierung ILDM-reduzierter Reaktionsmechanismen zur Berechnungen turbulenter nicht-vorgemischter Methanflammen. In: *20. Flammentag, VDI-Berichte 1629*, 2001, S. 479–486
- [126] SCHREEL, K. R. A. M. ; ROOK, R. ; GOEY, L. P. H.: The Acoustic Response of Burner Stabilized Premixed Flat Flames. *Proceedings of the Combustion Institute* 29(1) (2002), S. 115–122
- [127] SINGH, S. ; POWERS, J. M. ; PAOLUCCI, S.: On slow manifolds of chemical reacting flows. *Journal of Chemical Physics* 117(4) (2002), S. 1482–1496
- [128] SINGH, S. ; RASTIGEJEV, Y. ; PAOLUCCI, S. ; POWERS, J. M.: Viscous detonation in H<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>-Ar using intrinsic low-dimensional manifolds and wavelet adaptive multilevel representation. *Combustion Theory and Modelling* 5(2) (2001), S. 163–184

- [129] SKODJE, R. T. ; DAVIS, M. J.: Geometrical Simplification of Complex Kinetic Systems. *Journal of Physical Chemistry A* 105(45) (2001), S. 10356–10365
- [130] SMOOKE, M. D.: *Reduced Kinetic Mechanisms and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York : Lecture Notes in Physics 384, 1991
- [131] STAHL, G.: *Rechnerische Simulation stationärer und instationärer gestreckter Methan- und Propan-Luft-Flammen unter Verwendung detaillierter Reaktionsmechanismen*, Universität Heidelberg, Dissertation, 1989
- [132] STAHL, G. ; WARNATZ, J.: Numerical Investigation of time-dependent properties and extinction of strained methane- and propane-air flamelets. *Combustion and Flame* 85(3-4) (1991), S. 285–299
- [133] SUNG, C. J. ; LAW, C. K.: Structural Sensitivity, response and extinction of diffusion and premixed flames in oscillating counterflow. *Combustion and Flame* 123(3) (2000), S. 375–388
- [134] TOMLIN, A. ; TURANYI, T. ; PILLING, M. J.: Mathematical tools for the construction, investigation and reduction of combustion mechanisms. *Elsevier* (1997), S. 293–437
- [135] TONSE, S. R. ; MORIARTY, N. W. ; BROWN, N. J. ; FRENKLACH, M.: PRISM: Piecewise Reusable Implementation of Solution Mapping. An Economical Strategy for Chemical Kinetics. *Israel Journal of Chemistry* 39 (1999), S. 97–106
- [136] TURANYI, T.: Sensitivity analysis of complex kinetic systems. *Tools and Applications. Journal of Mathematical Chemistry* 5 (1990), S. 203–248
- [137] TYAGI, M. ; CHAKRAVARTHY, S. R. ; SUJITH, R. I.: Unsteady combustion response of a ducted non-premixed flame and acoustic coupling. *Combustion Theory and Modelling* 11(2) (2007), S. 205–226
- [138] UMWELTBUNDESAMT DER BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND: *Informationen zu gesetzlichen Vorschriften bezüglich Emissionen im Internet*, [www.umweltbundesamt.de/luft/infos/gesetze.html](http://www.umweltbundesamt.de/luft/infos/gesetze.html). 2006

- [139] VALORANI, M. ; GOUSSIS, D. A.: Explicit time-scale splitting algorithm for stiff problems: Auto-ignition of gaseous mixtures behind a steady shock. *Journal of Computational Physics* 169(1) (2001), S. 44–79
- [140] VAN OIJEN, J. A. ; BASTIAANS, R. J. M. ; GROOT, G. R. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Direct numerical simulations of premixed turbulent flames with reduced chemistry: Validation and flamelet analysis. *Flow, Turbulence and Combustion* 75(1-4) (2005), S. 67–84
- [141] VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Modelling of premixed laminar flames using flamelet-generated manifolds. *Combustion Science and Technology* 161(1) (2000), S. 113–137
- [142] VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Modelling of Premixed Laminar Flames using Flamelet-Generated Manifolds. *Combustion Science and Technology* 161(1) (2000), S. 113–137
- [143] VAN OIJEN, J. A. ; DE GOEY, L. P. H.: A numerical study of confined triple flames using a flamelet-generated manifold. *Combustion Theory and Modelling* 8(1) (2004), S. 141–163
- [144] VAN OIJEN, J. A. ; LAMMERS, F. A. ; DE GOEY, L. P. H.: Modeling of Complex Premixed Burner Systems by Using Flamelet-Generated Manifolds. *Combustion and Flame* 127(3) (2001), S. 2124–2134
- [145] WANG, H. Y. ; BECHTOLD, J. K. ; LAW, C. K.: Nonlinear Oscillations in diffusion flames. *Combustion and Flame* 145(1-2) (2006), S. 376–389
- [146] WARNATZ, J. ; MAAS, U. ; DIBBLE, R. W.: *Verbrennung*. 3. Aufl. Heidelberg - New York : Springer Verlag, 2001
- [147] WILLIAMS, F.: *Combustion Theory*. Addison-Wesley, New York, 1985
- [148] WÖLFERT, A. ; NAU, M. ; MAAS, U. ; WARNATZ, J.: PDF Calculations of Piloted Turbulent Non-Premixed Methane-Air Flames Based on Automatically Simplified Chemical Kinetics. In: *Proceedings of the 8<sup>th</sup> International Symposium on Transport Phenomena in Combustion*, San Francisco, 1995
- [149] XIAO, K. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U.: PDF Simulation of Turbulent Non-Premixed CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> –Air Flames using Automatically Simplified Chemical Kinetics. *Proceedings of the Combustion Institute* 27 (1998), S. 1073–1080

- [150] YAN, X. ; MAAS, U.: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds of Heterogeneous Combustion Processes. *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2000), S. 1615–1621
- [151] ZSELY, I. G. ; ZADOR, J. ; TURANYI, T.: On the similarity of sensitivity functions of methane combustion models. *Combustion Theory and Modelling* 9(4) (2005), S. 721–738
- [152] ZURBACH, S. ; GARRETON, D. ; SCHMIDT, D. ; MAAS, U. ; PLION, P.: Validation of a PDF-Monte Carlo method coupled with an ILDM kinetic model on turbulent jet flames. In: *Proceedings of the 2<sup>nd</sup> Symposium on Turbulence, Heat and Mass Transfer, Delft, 1997*





# Danksagung

Bei Herrn Prof. Dr.rer.nat. habil. U. Maas bedanke ich mich sehr für die Überlassung des interessanten Themas, vor allem aber für seine ständige Diskussionsbereitschaft, seine wertvollen Hilfestellungen und die für meine Arbeit förderlichen Freiräume. Die Zeit an seinem Institut war für mich mit vielfältigen neuen Erfahrungen und einer Weiterentwicklung meiner fachlichen Fähigkeiten verbunden.

Herrn Prof. Dr.-Ing. U. Spicher danke ich für die Übernahme des Mitberichts.

Den Kollegen vom Institut für Technische Thermodynamik der Universität Karlsruhe (TH) danke ich für das gute Arbeitsklima.

Die Deutsche Forschungsgemeinschaft förderte diese Arbeit im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 606; auch dafür bedanke ich mich.

Der größte Dank geht an meine Eltern Dora und Jörg König, die immer liebevoll und mit großem Verständnis für mich da sind und mir jede Unterstützung geben.



# Lebenslauf

## Persönliche Daten

Name	Karin König
Geburtsdatum/ -ort	29. Mai 1979/ Tübingen
Staatsangehörigkeit	Deutsch

## Schulbildung

1985 - 1989	Freie Evangelische Schule Reutlingen
1989 - 1998	Friedrich-List-Gymnasium Reutlingen; Abschluß: Allgemeine Hochschulreife

## Hochschulbildung

1998 - 2003	Studium der Fahrzeug- und Motorentechnik an der Universität Stuttgart
1998 - 2000	Grundstudium; Abschluß: Vordiplom
2000 - 2003	Hauptstudium mit den Hauptfächern Verbrennungsmotoren und Verbrennung; Abschluß: Diplom-Ingenieurin
2003 - 2008	Promotion bei Prof. Dr.rer.nat. habil. U. Maas, zunächst Universität Stuttgart, dann Universität Karlsruhe (TH)

Reutlingen, 29. September 2008  
Karin König



ISBN: 978-3-86644-302-0

---

[www.uvka.de](http://www.uvka.de)