

Flammenstabilisierung durch Verbrennung in festen Schwämmen

zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN (Dr.-Ing.)

der Fakultät für Chemieingenieurwesen und Verfahrenstechnik des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte
DISSERTATION

von
Dipl.-Ing. Neda Djordjevic
aus Kragujevac, Serbien

Referent: Prof. Dr.-Ing. Nikolaos Zarzalis

Korreferent: Prof. Dr. . Bettina Kraushaar-Czarnetzki

Tag der mündlichen Prüfung: 14.01.2011

Meinen Eltern, Milosav und Marijana gewidmet.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit ist am Lehrstuhl für Verbrennungstechnik des Engler-Bunte-Instituts des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) entstanden. Sie wurde im Rahmen der Forschergruppe 583 „Solid Sponges – Application of Monolithic Network Structures in Process Engineering“ der Deutschen Forschungsgemeinschaft finanziell gefördert.

Meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. Nikolaos Zarzalis, danke ich herzlich für das mir entgegengebrachte Vertrauen zur Durchführung dieser Arbeit und die stete Bereitschaft, mich mit seinem tiefgründigen Fachwissen zu unterstützen. Herrn Dr.-Ing. Peter Habisreuther schulde ich einen besonderen Dank, für seine stete fachliche, moralische und freundliche Unterstützung. Es war eine Ehre und ein Privileg in diesem Team arbeiten zu können und ich freue mich auf die zukünftige Zusammenarbeit.

Frau Prof. Dr. B. Kraushaar-Czarnetzki danke ich für die Zusammenarbeit, die Übernahme des Korreferats und für Ihr großes Interesse an dieser Arbeit.

Aufgrund der freundschaftlichen Atmosphäre am Lehrstuhl für Verbrennungstechnik wird mir die Zeit meiner Promotion stets positiv in Erinnerung bleiben. Ohne die Unterstützung von Freunden und Kollegen wäre die vorliegende Arbeit nicht in dieser Form zustande gekommen. Daher gilt mein besonderer Dank allen MitarbeiterInnen. Hierbei möchte ich hervorheben Thomas Lischer, Frank Wetzell und Paris Fokaides, die mich besonders am Anfang meiner Zeit am Lehrstuhl freundlich und fachlich unterstützt haben und Maximilian Weiss für seine wertvolle Zusammenarbeit. Meinem Zimmerkollegen, Plamen Kasabov, schulde ich einen großen Dank für seine ständige Bereitschaft mir bei alltäglichen Schwierigkeiten zu helfen. Meine Freunde Matthias Kern, Ilian Dinkov, Vlade Vukadinovic, Aleksander Aleksandrov, Stefan Harth und Michal Majcherczyk möchte ich hierbei auch besonders hervorheben da ihre Anwesenheit die Zeit meiner Promotion stark bereichert hat.

Einen sehr wertvollen Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit haben die technischen Angestellten des Institutes geleistet. Besonders möchte ich Herrn Helmut Pabel für seine ideelle und nicht selten auch ganz reale Unterstützung bei der Entwicklung der Versuchsanlage danken aber auch den Herren Peter Steitel, Meinrad Berg, Reiner Donnerhacke, Stefan Herbel und Hans-Dietrich Klette, ohne deren engagierte Mitarbeit der Versuchsbetrieb häufig zum Erliegen gekommen wäre.

Ich danke Herrn Walter Pfeffinger, der durch seine unermüdliche Arbeit an den Rechnern und dem Institutsnetzwerk einen reibungslosen Ablauf der Forschung am Institut ermöglicht.

Frau Dagmar Reinhardt danke ich herzlich für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Meinen Diplomarbeitern Peter Kratzmeier und Yosef Manik danke ich für ihr Engagement und ihre Mitwirkung an dieser Arbeit.

Schließlich gilt mein weitaus größter Dank meinen Eltern, Marijana und Milosav Djordjevic, meinem Bruder, Dusan Djordjevic und Georgios Michaloudis für ihre Unterstützung, Ermutigung und Verständnis.

Εν τέλει, οφείλω την μέγιστη ευγνωμοσύνη μου στους γονείς μου, Marijana και Milosav Djordjevic, στον αδερφό μου, Dusan Djordjevic και στον Γιώργο Μιχαλούδη για την υποστήριξη, την ενθάρρυνση και την κατανόηση τους.

Посебну захвалност дугујем својим родитељима, Маријани и Милосаву Ђорђевић, свом брату Душану Ђорђевић и Јоргосу Михалудис за њихову подрску, охрабрење и разумевање.

Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertation liefert einen Beitrag zur grundlegenden Untersuchung einer Flammenstabilisierung, welche durch eine in einem porösen, inerten, keramischen Medium (Schwamm) stattfindende Vormischverbrennung gewährleistet werden soll. Damit soll das hohe Potenzial der mageren Vormischflammen zur Minderung der Schadstoffemissionen zunutze gemacht werden mit gleichzeitiger Verhinderung der mit dieser Art der Verbrennungsausführung zusammenhängenden technischen Schwierigkeiten wie Flammenrückschlag, thermoakustischen Instabilitäten und Selbstzündung. Obwohl dieses Konzept zur Verbesserung der Zuverlässigkeit unterschiedlicher, umweltfreundlicher Verbrennungssysteme dienen kann, steht im Fokus dieser Arbeit seine potenzielle Anwendung in Gasturbinen mit dem Ziel der Minderung der Schadstoffemissionen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden experimentelle Untersuchungen durchgeführt, welche den Einfluss charakteristischer Eigenschaften der porösen inerten Medien (PIM) in Zusammenwirken mit den Eigenschaften des Brenngases auf die Stabilität der Verbrennung betrachten. Es wurden Erkenntnisse über den Verlauf und die Stabilität der Verbrennung im Schwamm in Abhängigkeit von dessen Geometrie und Materialeigenschaften (Wärmeleitfähigkeit, Porosität, Porengröße) gewonnen. Simultan mit den Flammenstabilitätsuntersuchungen wurde für jeden Betriebspunkt eine Analyse des Rauchgases durchgeführt. Eine weitere Charakterisierung des vorliegenden Verbrennungssystems umfasste die berührungslose Temperaturmessung des Schwammes am Brennerauslass und die Abgasanalyse im Brennerraum selbst.

Darüber hinaus wurde ein eindimensionales numerisches Modell der Verbrennung in keramischen Schwämmen definiert. Der größte Unterschied ist dabei im Vergleich zu anderen Modelle aus der Literatur die Berücksichtigung des Effektes der Strömungsdispersion auf beide Transportprozesse, Wärme- und Stofftransport, wobei die Dispersionskoeffizienten aus dreidimensionalen numerischen Simulationen der Mikroströmung in realen Schwammstrukturen gewonnen wurden. Um den möglichen Anwendungsbereich des vorgeschlagenen numerischen Modells zu bestimmen, wurden die numerische Simulationen für alle experimentell untersuchten Brennerkonfigurationen bezüglich der Verbrennungszone und für unterschiedliche Luftvorwärmtemperaturen durchgeführt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung.....	1
1.1	Motivation.....	2
1.2	Zielsetzung der Arbeit.....	6
1.3	Aufbau und Struktur der Arbeit.....	7
2	Theoretische Grundlagen.....	10
2.1	Keramische Schwämme.....	11
2.1.1	Struktur und Charakterisierung.....	11
2.1.1.1	Aufbau und Struktur.....	12
2.1.1.2	Morphologische Charakterisierungen.....	19
2.1.1.3	Modellierung der Schwammstruktur.....	25
2.1.2	Strömungsdynamische/Technische Parameter.....	29
2.1.2.1	Druckverlust.....	31
2.1.2.2	Strömungstortuosität.....	36
2.1.2.3	Strömungsregime in festen Schwämmen.....	38
2.1.2.4	Hydrodynamische Dispersion.....	39
2.1.3	Wärmetransporteigenschaften.....	45
2.1.3.1	Wärmeleitfähigkeit.....	45
2.1.3.2	Strahlungseigenschaften.....	48
2.1.3.3	Wärmeübergangskoeffizient.....	50
2.2	Vorgemischte Verbrennung.....	55
2.2.1	Laminare Vormischflamme.....	55

2.2.1.1 Brenngeschwindigkeit und Flammenstabilität.....	57
2.2.2 Schadstoffemissionen.....	63
2.2.2.1 Stickoxid-Bildung.....	63
2.2.2.2 Kohlenmonoxid-Bildung.....	68
2.2.3 Verbrennung in festen Schwämmen.....	69
2.2.3.1 Experimentelle Untersuchungen der Verbrennung in festen Schwämmen.....	72
2.2.3.2 Numerische Simulationen der Verbrennung in festen Schwämmen.....	76
3 Versuchsaufbau und Messtechnik.....	87
3.1 Eingesetzte poröse Materialien.....	88
3.2 Aufbau der Versuchsanlage.....	93
3.2.1 Porenbrenner.....	94
3.2.1.1 Statischer Mischer.....	97
3.3 Messmethoden.....	101
3.3.1 Aufnahme des axialen Temperaturprofils im Porenbrenner.....	101
3.3.2 Analyse des Rauchgases.....	104
3.3.3 Berührungslose Temperaturmessung.....	105
3.3.4 Ermittlung der Emissionsprofile innerhalb des Porenbrenners...	109
3.4 Beschreibung der Versuchsdurchführung.....	112
3.4.1 Druckverlustmessung.....	112
3.4.2 Stabilitätsuntersuchung.....	112
4 Ergebnisse und Interpretation.....	116
4.1 Experimentelle Untersuchung der Verbrennung in keramischen Schwämmen.....	117
4.1.1 Druckverlust.....	117
4.1.2 Temperaturprofil und Flammendicke.....	121
4.1.3 Flammenstabilität.....	123

4.1.3.1	Al ₂ O ₃ -Brenner.....	130
4.1.3.2	SiSiC-Brenner.....	135
4.1.3.3	Optimierung des Porenbrenners.....	141
4.1.4	Schadstoffemissionen.....	150
4.1.5	Bestimmung der Schwammtemperatur am Brenneraustritt.....	156
4.1.6	Messung der Emissionsprofile innerhalb des Schwammes.....	159
4.2	Numerische 1D-Modellierung der Verbrennung in keramischen Schwämmen.....	163
4.2.1	Numerisches Modell.....	164
4.2.1.1	Thermophysikalische Parameter der keramischen Schwämme.....	167
4.2.1.2	Bestimmung der Dispersionskoeffizienten.....	168
4.2.2	Temperaturprofil und Flammendicke.....	172
4.2.3	Relative Wichtigkeit verschiedener Transportvorgänge für die Flammenstabilisierung im Porenbrenner.....	174
4.2.3.1	Relativer Beitrag des Stofftransports gegenüber dem Wärmetransport mittels Strömungsdispersion.....	187
4.2.3.2	Sensitivität der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner auf Änderung des Extinktionskoeffizienten.....	188
4.2.3.3	Sensitivität der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner auf Änderung des charakteristischen Längenmaßes für Strömungsdispersion.....	190
4.2.4	Flammenstabilisierung in diversen Brennerkonfigurationen: numerische Untersuchung.....	192
4.2.4.1	Verbrennung in einem 10 PPI SiSiC-Schwamm (K04-Konfiguration).....	192
4.2.4.2	Verbrennung in einem 20 PPI SiSiC-Schwamm (K05-Konfiguration).....	194
4.2.4.3	Verbrennung in einem 10 PPI Al ₂ O ₃ -Schwamm (K01-Konfiguration).....	197

4.2.4.4 Verbrennung in einem 20 PPI Al ₂ O ₃ -Schwamm (K02-Konfiguration).....	200
4.2.4.5 Stabilitätsmodell.....	203
5 Zusammenfassung und Ausblick.....	207

1 Einleitung und Zielsetzung

Bedingt durch die Wechselwirkung zwischen dem Anstieg des Energieverbrauchs und den begrenzten Rohstoffreserven wurden die ressourcen- und umweltschonenden Verfahren als zentrale Ziele für Forschung und Entwicklung der Energieerzeugungssysteme vorgegeben [1]. Dies setzt die mit kompakterer Bauweise und steigender Belastung der Brennkammer verknüpfte effizientere Energienutzung mit gleichzeitiger Reduzierung des Schadstoffausstoßes voraus. Als ein nachhaltiges Verbrennungsverfahren gewinnt das Konzept der mageren Vormischverbrennung immer mehr an der Bedeutung. Hierbei wird dem Brennraum ein bereits homogen vermisches brennbares Brennstoff/Luft-Gemisch zugeführt und dort gezündet und verbrannt. Das Gemisch zeichnet sich durch einen hohen Luftüberschuss aus, wodurch niedrige Verbrennungstemperaturen realisiert werden, was eine Unterdrückung der Stickoxidbildung zur Folge hat. Darüber hinaus ermöglichen die hohen Luft/Brennstoff Verhältnisse einen vollständigen Ausbrand, wodurch die Rußbildung und die Emission des Kohlenmonoxids minimiert werden können. Neben dem einerseits großen Potenzial der Vormischflammen zur Minderung der Schadstoffemissionen ist diese Art der Verbrennungsausführung andererseits stark mit den technischen Schwierigkeiten wie Flammenrückschlag, thermoakustischen Instabilitäten und Selbstzündung verbunden. Deshalb zeichnen sich die Neuentwicklungen der Vormischbrenner durch die Bestrebungen aus, einen hochstabilen Verbrennungsprozess unter mageren Vormischbedingungen zu gewährleisten. Als ein der Ergebnisse dieser Bestrebungen erschien im vergangenen Jahrzehnt das Porenbrennerkonzept.

In einem Porenbrenner findet die Verbrennung nicht mehr in der offenen Flamme statt, sondern wird innerhalb eines dreidimensionalen Volumens einer porösen Hochtemperaturkeramik stabilisiert. Diese Stabilisierung innerhalb eines inerten Porenkörpers geschieht durch den intensivierten Wärmetransport bedingt durch die hervorragenden Wärmetransporteigenschaften des Feststoffs relativ zum Gas. Dadurch ist eine „flammenlose“, volumetrische Verbrennung in Form einer glühenden Keramikmatrix möglich, welche eher als Verbrennungsreaktor denn als Brennraum mit freien Flammen charakterisiert werden kann. Die Vorteile der Porenbrennertechnik können mit einer äußerst kompakter Bauweise und einer extrem hohen, stufenlosen Leistungsdynamik bei gleichzeitig minimaler Schadstoffemission beschrieben werden [2]. Der glühende Reaktor liefert darüber hinaus einen hohen IR-

Strahlungsanteil ohne jegliche Flammenbildung an der Oberfläche – Eigenschaften, die ansonsten nur elektrische Wärmestrahler aufweisen [3].

Die glühende Keramikstruktur kann also sowohl als strahlende Oberfläche als auch als homogene Heißluft- bzw. Abgasquelle genutzt werden, welche die Wärme vollkommen gleichmäßig abgibt. Deshalb ist diese Art des Verbrennungskonzepts in kommerzieller Anwendung meistens als Heizkörper und in industrieller Heizung und Trocknung zu finden. Das Benefiz der vom Porenbrenner emittierten IR-Strahlungswärme ist eine deutlich schnellere Erhitzungszeit als nur durch den herkömmlich verwendeten konvektiven Wärmetransport erreicht werden kann. Dieser Vorteil ermöglicht in Anwendung als industrieller Trockner eine reduzierte Offenlänge, eine höhere Fließbandgeschwindigkeit und eine bessere Oberflächenqualität der Produkte [4].

Motiviert durch die zuvor genannten Vorteile der Porenbrennertechnik, hohe Stabilität der Vormischflammen mit gleichzeitig geringen Schadstoffemissionen, wird in dieser Arbeit ein weiteres Anwendungsfeld dieses Verbrennungskonzeptes im Pilotbrenner der Gasturbinen untersucht.

1.1 Motivation

Die Forderungen nach größerer Gesundheits- und Umweltverträglichkeit der technischen Entwicklung führte in den vergangenen Dekaden zu verstärkten Bestrebungen, Schadstoffemissionen der Gasturbinen schon im Entstehungsprozess zu verringern. Die Strategie, die zur Minimierung der NO_x -Emissionen bei Gasturbinen verfolgt wird, ist die Abmagerung des Gemisches in der Flammenstabilisierungszone mit dem Ziel die hohen Temperaturen, die für die NO_x -Emissionen verantwortlich sind, zu vermeiden. Diese Vorgehensweise, die unter dem Begriff „Vormischverbrennung“ bekannt ist, setzt eine Homogenisierung des Gemisches voraus, wodurch die Temperaturverteilung in der Brennkammer kaum Unterschiede aufweist und in der Größenordnung der mittleren Brennkammeraustrittstemperatur liegt. Bei stationären Gasturbinen beträgt die bei Vollastbedingungen in der Nähe der Flammentemperatur liegende mittlere Brennkammeraustrittstemperatur nicht über 1800 K. Bei Teillastbedingungen fällt die mittlere Temperatur drastisch ab und sowohl die Stabilisierung als auch die Beherrschung der Emission von CO und unverbrannten Kohlenwasserstoffen gestalten sich als sehr schwierig. Die meisten Hersteller verwenden deshalb im unteren Lastbereich eine im Diffusionsbetrieb arbeitende Pilotflamme, um die Stabilität zu gewährleisten. Um diese konstruktive Lösung zu veranschaulichen wurde ein mit beiden, Vormisch- und Diffusionsflamme betriebenen Brenner der Fa. Siemens, auch „hybrid Brenner“ genannt, in Abb. 1.1 beispielhaft gezeigt [5]. Die Folge der diffusiven Verbrennung ist das Auftreten von Temperaturspitzen, die zu

erhöhten NO_x -Emissionen führen. Darüber hinaus neigen mit Vormischbrennern arbeitende Feuerungssysteme zur Ausbildung von thermoakustischen Schwingungen. Die dabei auftretenden Druckschwankungen können so groß sein, dass die Anlage nicht im gesamten geforderten Lastbereich betrieben werden kann. Um das Auftreten von Schwingungsproblemen zu umgehen, wird die diffusiv arbeitende Pilotflamme auch bei höheren Lastzuständen nicht abgeschaltet und stellt somit auch in diesen Lastbereichen die hauptsächliche Quelle der NO_x -Emission dar.

Eine weitere Verschärfung der existierenden Grenzwerte, die bereits zum Teil in den USA (Kalifornien) durchgesetzt wurde, hat zur Folge, dass verschiedene Gasturbinenhersteller gegenwärtig Konzepte untersuchen, welche die Verwendung einer Diffusionsverbrennung total vermeiden und die Pilotflamme durch einen Katalysator stabilisieren.

Bei den zurzeit untersuchten Konzepten zur katalytischen Verbrennung in Gasturbinen ist das Trägermaterial metallisch und weist eine Wabenstruktur auf. Da die Temperatur für den Katalysator auf ca. 1000°C begrenzt ist, kann in diesem nur ein Teil des Brennstoffes umgesetzt werden. Durch die Teilverbrennung wird die Temperatur des Gemisches vor Brennkammereintritt erhöht und es werden darüber hinaus reaktive Radikale erzeugt [6, 7]. Der Katalysator übernimmt somit die Funktion eines Flammenhalters.

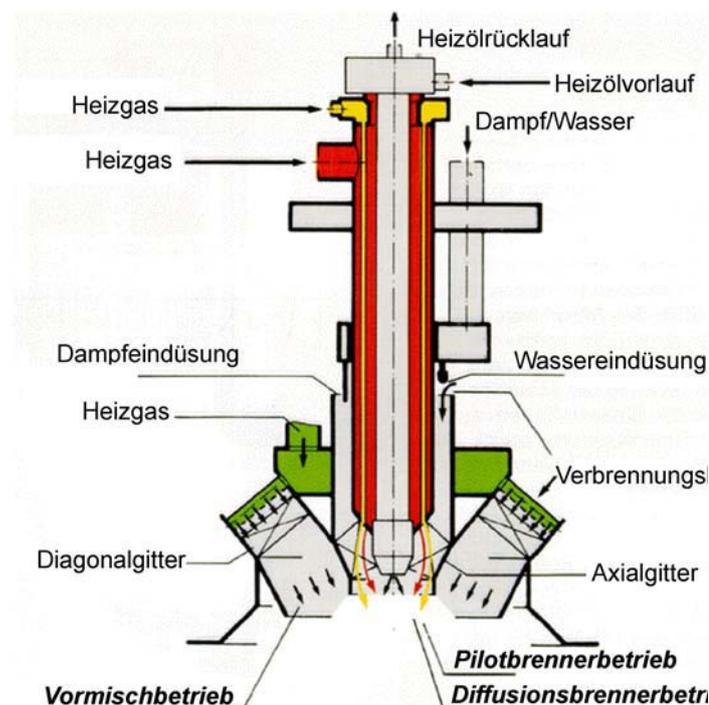


Abbildung 1.1: Siemens Hybrid Brenner [5]

Zur Umsetzung des Prinzips der Teilverbrennung existieren derzeit zwei Varianten, das **Rich Catalytic Lean (RCL)** und das **Lean Catalytic Lean (LCL)** Konzept. Beiden Konzepten ist die Ausführung des Katalysators als Rohrbündelwärmetauscher gemeinsam. Die Rohre, die selbst nicht katalytisch beschichtet sind, werden durchströmt, um den Katalysator zu kühlen. Der Vorteil beider Konzepte liegt im Betriebsbereich der Teillast, weil in diesem der Anteil des Brennstoffumsatzes des Pilotbrenners im Vergleich zum Gesamtumsatz am größten ist. Darüber hinaus stellt der Katalysator durch seine poröse Struktur einen akustischen Dämpfer für das gesamte System dar, wodurch thermoakustische Schwingungen unterdrückt werden.

Die beiden Konzepte sollen im Folgenden anhand von Abb. 1.2 erläutert werden. Beim **RCL** Konzept wird nur ein Teil der Luft mit dem Brennstoff vorgemischt, so dass die Reaktion an der Katalysatoroberfläche unter Sauerstoffmangel (fette Bedingungen) abläuft. Der Anteil der Luft, der nicht vorgemischt wurde, wird zum Kühlen des Katalysators verwendet und strömt durch die Rohre. Die Vorteile dieses Konzeptes sind:

- wegen des fetten Gemisches wird die Reaktion im Katalysator leichter gezündet
- die Gefahr der Selbstzündung in den Kühlungsrohren ist nicht vorhanden, da diese mit reiner Luft durchströmt werden

Der große Nachteil des Konzeptes ist die Tatsache, dass die verschiedenen Teilströme nach dem Katalysator schnell und homogen gemischt werden müssen, um die Bildung von Temperaturspitzen zu vermeiden. Die bei diesem Konzept realisierten Konversionsraten innerhalb des Katalysators liegen in der Größenordnung von 10-20%. Die Katalysatoraustrittstemperatur beträgt dabei ca. $T_{\text{kat,aus}} = 600^\circ\text{C}$.

Beim **LCL** Konzept wird zunächst die gesamte Luft mit dem Brennstoff vorgemischt. Allerdings strömt nur ein Teil dieses Gemisches durch den Katalysator. Der überwiegende Anteil strömt durch die Rohre und kühlt den Katalysator. Durch das LCL Konzept werden höhere Konversionsraten erreicht (ca. 25-49%) und die Katalysatoraustrittstemperatur beträgt ca. $T_{\text{kat,aus}} = 800^\circ\text{C}$. Der große Vorteil des LCL Konzeptes besteht darin, dass die Bereitstellung eines Gemisches mit homogener Stöchiometrie nach dem Katalysator kein Problem darstellt. Wegen des Wärmetransports vom Katalysator in die Kühlungsrohre ist aber die Temperaturverteilung nach dem Katalysator nicht homogen, wie es von einem reinen Vormischkonzept erwartet wird.

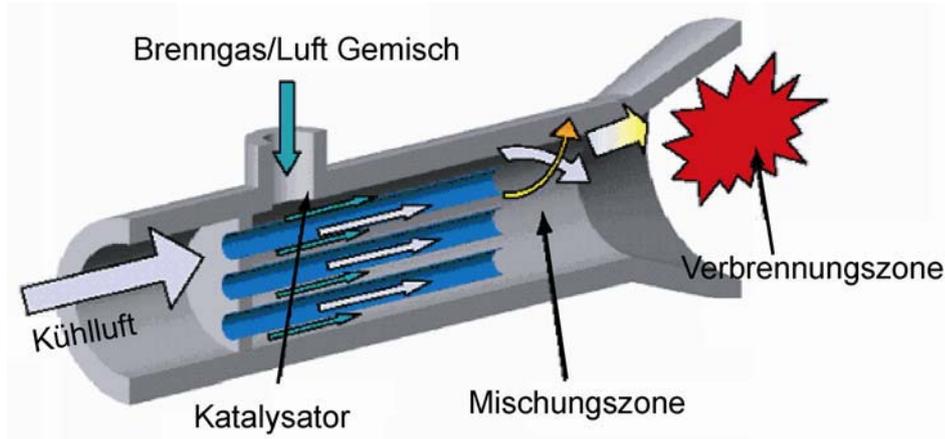


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung katalytischer Verbrennung im Pilotbrenner einer Gasturbine

Das LCL Konzept weist folgende Nachteile auf:

- Wegen des mageren Gemisches gestaltet sich die Zündung des Katalysators schwieriger.
- Da das Kühlmedium ein brennbares Gemisch ist, ist die Gefahr der Selbstzündung, die zu einer Zerstörung des Systems führt, vorhanden. Aus diesem Grund ist der Katalysator im ersten Teil hochreaktiv (z.B. Pt) und im zweiten Teil temperaturselbstbegrenzend (z.B. Pd).

Die zuvor eingeführten Überlegungen zeigen, dass das Verzicht auf den im diffusiven Modus arbeitenden Pilotbrenner mit gleichzeitiger Vermeidung der Nachteile der katalytischen Verbrennung die Realisierung einer hoch stabilen Vormischverbrennung voraussetzt. Die Idee, die in vorliegender Arbeit verfolgt wird, ist das Erreichen der hohen Flammenstabilität in einem Pilotbrenner durch das Einsetzen des Porenbrennerkonzepts (Abb. 1.3). Dementsprechend ist das Ziel der vorliegenden Arbeit die Untersuchung des Potentials einer neuartigen Stabilisierung, die durch eine in einem porösen, inerten, keramischen Medium (Schwamm) stattfindende Vormischverbrennung gewährleistet werden soll. Durch diese Art der Flammenstabilisierung würden sich folgende Vorteile ergeben:

- Da die Verbrennung nicht katalytisch sondern in der Gasphase abläuft, wird die Temperatur durch die Materialtemperatur der Keramik begrenzt, die deutlich über der zulässigen maximalen Katalysatortemperatur liegt.
- Durch ein geschicktes Design kann das Problem des Flammenrückschlags gelöst werden.

- Der intensive Wärme- und Stofftransport macht den Pilotbrenner unempfindlich gegenüber geringen Mischungsinhomogenitäten im Frischgemisch.
- Die poröse Struktur des festen Schwammes wirkt als akustischer Dämpfer für das Gesamtsystem Brenner/Brennkammer.

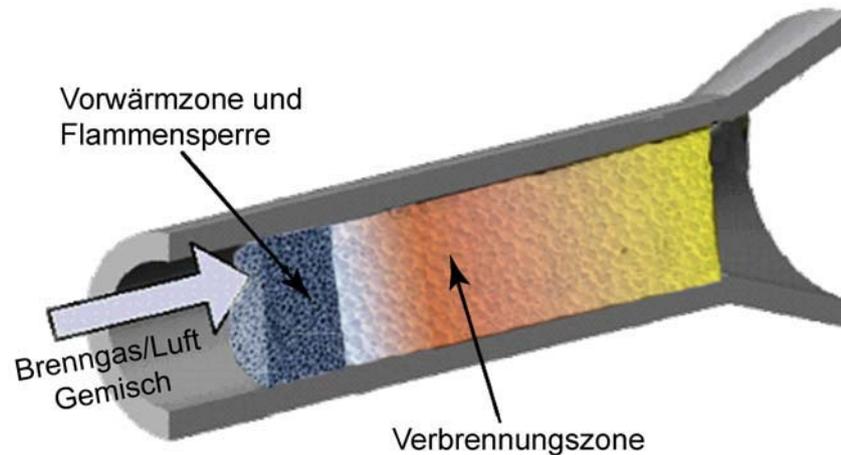


Abbildung 1.3: Schematische Darstellung der Verbrennung im keramischen Schwamm im Pilotbrenner einer Gasturbine

1.2 Zielsetzung der Arbeit

Die oben diskutierten Vorteile der Verbrennung in porösen Medien sind eng mit den Eigenschaften eingesetzter Porenkörper verknüpft. Für die untersuchte Anwendung in Pilotbrenner der Gasturbinen wurden in der vorliegenden Arbeit die keramischen Schwammstrukturen gewählt. Diese porösen Medien weisen im Gegensatz zu Schüttungen eine hohe Porosität auf, wodurch der gaseitige Druckverlust klein und die Aufheiz- und Abkühlzeiten kurz gehalten werden.

Das Flammenstabilisierungsprinzip in einem Porenbrenner basiert auf dem erhöhten Wärmetransport, welcher durch die um Größenordnung bessere Wärmetransporteigenschaften fester Phase relativ zum Gas gewährleistet wird. Demzufolge stellen die Wärmetransporteigenschaften der porösen Matrix einen Schlüsselpunkt für die Flammenstabilisierung dar und sie sind durch die Schwammgeometrie und Werkstoffeigenschaften bestimmt.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, systematische Untersuchungen durchzuführen, die den Einfluss charakteristischer Eigenschaften der porösen inerten Medien (PIM) in Zusammenwirken mit den Eigenschaften des Brenngases auf die

Stabilität der Verbrennung beschreiben. Es sollen Erkenntnisse über den Verlauf und die Stabilität der Verbrennung im Schwamm in Abhängigkeit von dessen Geometrie und Materialeigenschaften (Wärmeleitfähigkeit, Porosität, Porengröße) gewonnen werden.

Deshalb werden im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Flammenstabilitätsuntersuchungen durchgeführt, wobei die folgenden Einflussgrößen variiert werden:

- die Gemischtemperatur
- die Stöchiometrie des Gasgemisches
- die Struktur des PIM (Porosität, spezifische Oberfläche)
- die thermophysikalische Parameter des PIM (Wärmeleitfähigkeit, Emissionsgrad)

Zur Variation der thermophysikalischen Parameter wurden zwei Werkstoffe (SiSiC und Al_2O_3) eingesetzt. Für jeden der Werkstoffe wurden dementsprechend unterschiedliche geometrische Strukturen verwendet. Dazu werden die Materialkenngrößen, Porosität und spezifische Oberfläche unabhängig voneinander variiert. Die aus den Untersuchungen resultierenden Ergebnisse stellen die unbedingte Voraussetzung zur Auslegung und Dimensionierung von Schwämmen für den zukünftigen Einsatz als Pilotbrenner in Gasturbinen dar. Die Ergebnisse der bereits in Literatur veröffentlichten Untersuchungen stellen zwar eine gute Grundlage für die zukünftige Auslegung von atmosphärischen Porenbrennern dar, jedoch steht die quantitative Beschreibung des Stabilitätsmechanismus noch aus.

Darüber hinaus wurde als Ziel der vorliegenden Arbeit ein eindimensionales numerisches Modell der Verbrennung in keramischen Schwämmen definiert, welches das experimentell detektierten Flammenstabilitätsverhalten mit ausreichender Zuverlässigkeit wiedergibt. Weiterhin soll ein solches numerisches Modell einen tieferen Einblick in den Flammenstabilisierungsmechanismus im Porenbrenner ermöglichen.

1.3 Aufbau und Struktur der Arbeit

Die Arbeit gliedert sich in drei Hauptabschnitte. Dabei werden in Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen, die zur Erläuterung der verwendeten Methoden und Ergebnisse erforderlich sind, eingeführt und diskutiert. In Kapitel 3 werden die für den experimentellen Teil dieser Arbeit verwendete Versuchsanlage und die eingesetzten Messmethoden vorgestellt. Die Ergebnisse sowohl der experimentellen

Untersuchungen als auch der numerischen Simulationen der Verbrennung in PIM werden in Kapitel 4 dargelegt und ausführlich diskutiert.

Zum besseren Verständnis der zugrundeliegenden Phänomene bei der Verbrennung in PIM werden in **Kapitel 2** *Theoretische Grundlagen* zunächst die im untersuchten Porenbrenner eingesetzten keramischen Schwammstrukturen vorgestellt. Hierbei wird im Abschnitt *Struktur und Charakterisierung* die komplexe und randome Topologie fester Schwämme im Detail erörtert, da diese sehr stark alle Transportvorgänge in solchen Strukturen beeinflusst. Weiterhin werden die zur Beschreibung des Verbrennungsvorganges im Porenbrenner erforderliche *Strömungsdynamische /Technische Parameter* und *Wärmetransporteigenschaften* keramischer Schwämme und ihre komplexe Wechselbeziehung mit der Schwammgeometrie diskutiert. Die fundamentalen Kenntnisse über diesen Schwammeigenschaften sind wichtig, da im Fokus dieser Arbeit der Einfluss dieser Parameter auf die Flammenstabilität im Porenbrenner steht.

Ein umfassendes Verständnis der grundlegenden physikalischen und chemischen Vorgänge stellt eine Voraussetzung für die Beschreibung der Vormischverbrennung im porösen inerten Medium. Diese Grundlagen werden deshalb im Abschnitt *Laminare Vormischflamme* präsentiert. Hierbei wird auf die für die Flammenstabilität entscheidende Charakteristik der Vormischflammen, die laminare Brenngeschwindigkeit und ihre Einflussparameter näher eingegangen. Darüberhinaus ist die Motivation für die vorliegenden Untersuchungen die Minderung der Schadstoffemissionen in Gasturbinen. Zum Verständnis der Mechanismen ihrer Reduktion sind die im Abschnitt *Schadstoffemissionen* dargestellten Kenntnisse der Bildungswege von beiden, Stickoxide und Kohlenmonoxid, erforderlich.

Ein weiterer Abschnitt beschäftigt sich mit dem Porenbrennerkonzept und hier wurde eine ausführliche Literaturübersicht der beiden experimentellen und numerischen Untersuchungen der *Verbrennung in festen Schwämmen* gegeben. Die in diesem Abschnitt vorgestellten und diskutierten Literaturangaben stellen eine Grundlage für die vorliegende Arbeit dar.

In **Kapitel 3** *Versuchsaufbau und Messtechnik* werden die für die experimentellen Untersuchungen *eingesetzten porösen Materialien* vorgestellt und geometrisch charakterisiert. Darüberhinaus wird in diesem Kapitel die für die Flammenstabilitätsuntersuchungen unter atmosphärischen Druck ausgelegte *Versuchsanlage* in Detail beschrieben und die Grundlagen der angewandten *Messmethoden* werden eingeführt. Zusätzlich wird in Kapitel 3 die *Beschreibung der Versuchsdurchführung* für jeweilige Untersuchung gegeben.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit werden in **Kapitel 4** *Ergebnisse und Interpretation* dargestellt und auf Basis der in Kapitel 2 bereits beschriebenen Grundlagen diskutiert. Dieses Kapitel besteht aus zwei Hauptteilen: *Experimentelle Untersuchungen der Verbrennung in keramischen Schwämmen* und *Numerische 1D Modellierung der Verbrennung in keramischen Schwämmen*. Im experimentellen

Teil des Kapitels 4 wird zunächst eine Charakterisierung der eingesetzten Schwammstrukturen bezüglich des *Druckverlusts* durchgeführt. Darüber hinaus werden die aus den experimentellen Untersuchungen ermittelten Flammenstabilitätsdiagramme für diverse Brennerkonfigurationen dargestellt und diskutiert. Einen Einfluss der Strukturparameter und der Materialeigenschaften auf die *Flammenstabilität* wird dabei beobachtet. Eine maßgebliche Minderung der Stickstoffoxidemissionen mit gleichzeitiger Aufrechterhaltung der geringen Kohlenmonoxidemissionen stellt eine Voraussetzung zum Einsatz eines Porenbrenners als Pilotbrenner der Gasturbine dar. Im Hinblick auf diese Motivation werden die Messungen der *Schadstoffemissionen* für alle untersuchten Brennerkonfigurationen dargestellt und diskutiert. Zusätzlich ermöglichen die *Bestimmung der Schwammtemperatur am Brenneraustritt* und die *Messung der Emissionsprofile innerhalb des Schwammes* einen näheren Einblick in den Verbrennungsvorgang in einem inerten porösen Medium.

Im zweiten Teil des Kapitels 4 wird ein für die eindimensionale Modellierung der Verbrennung in festen Schwämmen vorgeschlagenes *numerisches Modell* dargestellt. Die durchgeführte numerische Modellierung der Verbrennung in PIM ermöglicht einen tieferen Einblick in den Flammenstabilisierungsmechanismus und liefert die Informationen über die *relative Wichtigkeit verschiedener Transportvorgänge für die Flammenstabilisierung in Porenbrenner*. Das numerische Modell wird durch die im Rahmen dieser Arbeit experimentell ermittelten Daten validiert. Dabei wird die *Flammenstabilisierung in diversen Brennerkonfigurationen numerisch untersucht* unter Variation der Schwammgeometrie und Werkstoffeigenschaften und die ermittelten Ergebnisse bezüglich der Brenngeschwindigkeit in PIM wurden mit den entsprechenden Messdaten verglichen. Anhand von ermittelten Daten wurde ein halbempirisches auf Pe-Zahl basiertes *Stabilitätsmodell* vorgeschlagen.

Zum Abschluss der vorliegenden Arbeit werden die Schlüsselpunkte noch einmal in **Kapitel 5** zusammengefasst.

2 Theoretische Grundlagen

Im Fokus der vorliegenden Arbeit steht eine durch das Porenbrennerkonzept realisierte Stabilisierung der Vormischflammen. Dazu wurden, aufgrund ihrer hohen Porosität, hohen Temperaturbeständigkeit und guten Wärmetransporteigenschaften, die keramischen Schwammstrukturen gewählt. Die Geometrie dieser Strukturen hat einen entscheidenden Einfluss auf den Verbrennungsprozess im Porenbrenner. Daher werden im ersten Teil des Kapitels *Theoretische Grundlagen*, sowohl die komplexe Strukturgeometrie und die Transporteigenschaften fester Schwämme, als auch deren Wechselwirkung ausführlich beschrieben. Der zweite Teil dieses Kapitels behandelt die für die vorliegende Studie relevanten Grundlagen der Vormischverbrennung. Im dritten Teil des Kapitels 2 wird eine Übersicht der in der Literatur verfügbaren experimentellen und numerischen Studien der Verbrennung in inerten, porösen Medien gegeben.

2.1 Keramische Schwämme

Aufgrund ihrer hervorragenden Eigenschaften (hohe Porosität, große spezifische Oberfläche, geringer Strömungswiderstand und hohe mechanische Stabilität) besitzen offenporige keramische Schwämme ein weites Anwendungsspektrum z. B. als Filter für heiße Abgase, thermische Isolation, Träger für Katalysatormaterialien, medizinische Implantate, Porenbrenner usw. Die potentiellen Anwendungen keramischer Schwämme bestehen insbesondere für Reaktionen, bei denen hohe Fluiddurchsätze gefordert sind, starke Wärmetönungen auftreten und/oder der Stofftransport die Kinetik beeinträchtigt [8]. Jedoch steht der breiten kommerziellen Nutzung von keramischen Schwämmen entgegen, dass die quantitative Beschreibung der Transportphänomene in solchen Strukturen bislang auf semi-empirische Korrelationen eingeschränkt ist. Der wichtigste Grund dafür liegt in der Schwierigkeit, die komplexe Geometrie und randome Orientierung der Stege, die eine Schwammstruktur charakterisieren, mit globalen Parametern wiederzugeben. Deshalb wird im Abschnitt *Struktur und Charakterisierung* näher auf die Strukturmerkmale und ihre Bestimmung eingegangen.

Aufgrund der Komplexität der Schwammstrukturen besteht immer noch ein Defizit im Verständnis und in der quantitativen Beschreibung von Transportvorgängen in festen Schwämmen. Die komplexen Strömungsvorgänge in festen Schwämmen werden im Abschnitt *Strömungsdynamische/Technische Parameter* beschrieben. Für die Prozesse in vernetzten monolithischen Schwammstrukturen, charakterisiert mit starken Wärmetönungen wie z.B. Verbrennungsprozesse spielen die Wärmetransporteigenschaften eine entscheidende Rolle. Ein Überblick über die theoretischen und empirischen Modelle zur Beschreibung verschiedener Wärmetransportkoeffizienten wird im Abschnitt *Wärmetransporteigenschaften* gegeben.

2.1.1 Struktur und Charakterisierung

Im Gegensatz zu den Kugelschüttungen und Wabenkörpern ist die Schwammstruktur nicht mit einem integralen Parameter beschreibbar. Die Schwammstruktur, die sich aus dem Herstellungsprozess ergibt, ist mit einer Verteilung aller geometrischen Merkmale charakterisiert. Die Breite und der Mittelwert dieser Verteilungen spielen eine entscheidende Rolle für alle Prozesse in keramischen Schwämmen. Neben den globalen Parametern poröser Strukturen wie Porosität und spezifische Oberfläche, die auch zur Beschreibung anderer Packungen wie z.B. Kugelschüttungen dienen, ist es nötig, die Mikrotopologie fester Schwämmen zu erfassen, um die Prozesse innerhalb solcher Strukturen modellieren

zu können. Im folgenden Abschnitt wird näher auf die detaillierte Mikrostruktur eingegangen. Es werden sowohl die experimentell erfassbaren Parameter zur Beschreibung von Schwammstrukturen als auch die vorliegenden Modelle zur künstlichen Generierung eines Mikrostrukturmodells dargestellt.

2.1.1.1 Aufbau und Struktur

Feste Schwämme sind zelluläre, feste Strukturen, die aus stabilen, untereinander verbundenen Stegen bestehen. Stege und Hohlräume bilden zwei kohärente, kontinuierliche Netzwerke, die einander durchdringen (Abb. 2.1a). In der Literatur werden für solche Strukturen meist Begriffe wie Schäume oder „foams“ verwendet. Da jedoch Schäume per Definition aus geschlossenen Blasen bestehen, ist ihre Hohlraumphase nicht kontinuierlich sondern dispers [8] (Abb. 2.1b). Deshalb wird in dieser Arbeit der nicht missverständliche Begriff „Schwamm“ verwendet.

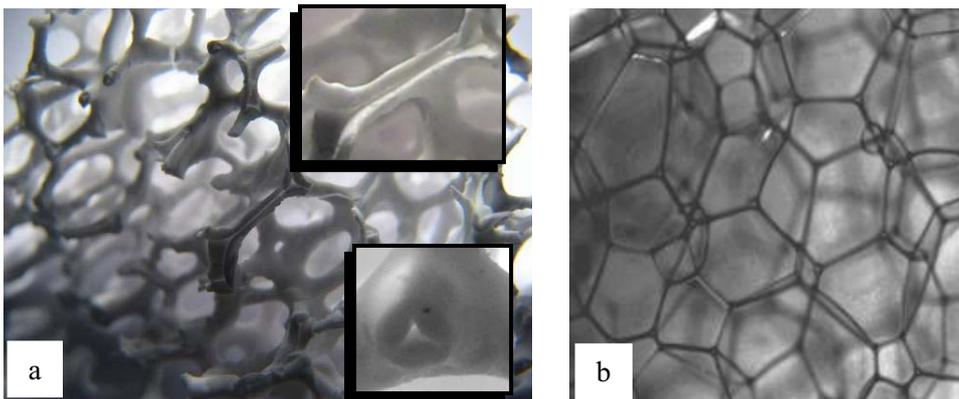


Abbildung 2.1: Beispiele der zellulären Festkörper: a: Keramischer Schwamm, Detail: Hohlräume in Stegen; b: Schaum

Zur Beschreibung komplexer Strukturen, wie sie in festen Schwämmen vorliegen, ist die Unterteilung ihrer Eigenschaften in zwei Gruppen mit verschiedenen charakteristischen Längenmaßen zweckmäßig: mikroskopische (morphologische) Merkmale und makroskopische Eigenschaften. Im Folgenden werden diese Eigenschaften kurz aufgelistet und dargestellt.

Mikroskopische Eigenschaften

In einer Schwammstruktur können folgende Teile der Struktur (morphologische Parameter) unterschieden werden (Abb. 2.2):

- **Stege** sind Strukturelemente in Form von dreieckigen Prismen, die das Netzwerk in der festen Phase aufbauen. Sie sind oft so abgerundet, dass sie zu einer zylindrischen Geometrie neigen. Die Verbindung der Stege in einem Schwamm untereinander (Stegkonnektivität) ist durch **Knoten** gegeben, in denen sich jeweils vier Stege treffen;
- **Zellen** sind polyedrische Räume, von denen sich jeweils drei an einem Steg treffen;
- **Fenster** stellen die flächige Verbindung von zwei Zellen dar. Sie werden in festen Schwämmen im Durchschnitt durch fünf Stege begrenzt und sind somit eine pentagonale Geometrie. [9]

Bedingt durch die Art der Herstellung fester Schwämme ergeben sich randome Netzwerke, die sich nicht mit einer einheitlichen Zellabmessung (Porengröße) charakterisieren lassen, sondern viel mehr mit einer relativ breiten Porengrößenverteilung charakterisiert werden müssen. In [10] wurde dazu mit Hilfe einer Bildanalyse die Größenverteilung eines keramischen Schwammes erfasst. Die so ermittelte Verteilung der Porendurchmesser kann entweder mit einer Gaußnormalverteilung oder einer log-normalen Verteilung beschrieben werden.

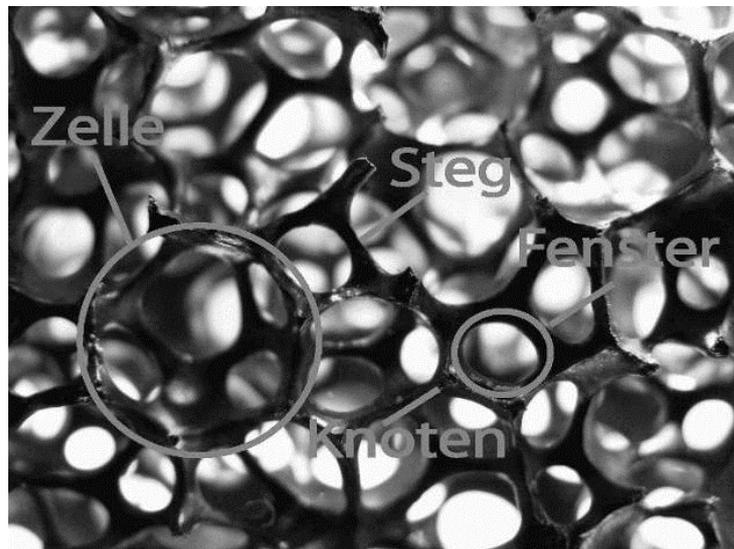


Abbildung 2.2: Morphologische Eigenschaften der Schwammstrukturen

Makroskopische Eigenschaften

Mit Rücksicht auf den großen erforderlichen Aufwand für die Bestimmung der morphologischen Merkmale von Schwammstrukturen werden diese Geometrien oft nur durch die makroskopischen Eigenschaften charakterisiert.

Das Material, aus welchem ein Schwamm hergestellt wurde, ist ein wichtiger globaler und damit in gewissem Sinne makroskopischer Parameter, da es die wesentlichen technischen Eigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit, Emissionsgrad, Härte, Thermoschockbeständigkeit, maximale Einsatztemperatur usw. bestimmt. Die Schwammstrukturen lassen sich ebenso aus Metallen wie aus diversen oxidischen und karbidischen Keramiken und auch aus Polymeren fertigen, wobei die zuletzt genannten keine Bedeutung für die hier untersuchte Anwendung haben. Keramikmaterialien mit guter chemischer Beständigkeit weisen oft eine geringe Thermoschockbeständigkeit auf. Metalle dagegen besitzen häufig die Fähigkeit, starken Temperaturänderungen widerstehen zu können. Auch besitzen sie im Allgemeinen eine größere Wärmeleitfähigkeit als keramische Materialien, sind aber bei hohen Temperaturen weniger beständig gegen Korrosion [11]. Da in der vorliegenden Arbeit keramische Schwämme im Fokus sind, werden im Folgenden zunächst die für die Anwendung im Porenbrenner geeigneten Materialien aufgeführt. Darüber hinaus sind die ausgewählten technischen Parameter dieser Werkstoffe in Tab. 2.1 aufgelistet. In diesem Zusammenhang ist es wichtig zu betonen, dass die hierbei angegebenen Werte nur für einen Festkörper aus dem betrachteten Werkstoff gelten und nicht direkt für poröse Strukturen anwendbar sind.

Aluminiumoxid (Al_2O_3). Dieser oxidkeramische Werkstoff wird mit einer Dichte von $3,99 \text{ g cm}^{-3}$ charakterisiert und weist einen Schmelzpunkt von 2050°C auf [12], d. h. ein Hochtemperatureinsatz bis etwa 1900°C ist für diesen Werkstofftyp möglich. Seine Wärmeleitfähigkeit liegt bei Raumtemperatur bei $25 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ [13] und sinkt mit steigender Temperatur, so dass sie bei 1000°C nur noch $5 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ beträgt [12]. Der Emissionskoeffizient hat einen ähnlichen Verlauf und nimmt Werte von 0,63 bis 0,26 an [11].

Siliciumcarbid (SiC). Einer der wichtigsten nichtoxidischen keramischen hochfeuerfesten Werkstoffe ist Siliciumcarbid (SiC). SiC weist eine Dichte von $3,15 \text{ g cm}^{-3}$ auf und schmilzt bei 2830°C . Allerdings erfolgt eine Dissoziation unter Normaldruck schon ab 2000°C . SiC besitzt eine ausgezeichnete Wärmeleitfähigkeit von $80\text{-}150 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ bei 20°C , die auch bei erhöhter Temperatur von 1000°C immer noch $20\text{-}50 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ beträgt [13]. Die hohe Wärmeleitfähigkeit, gekoppelt mit einem geringen Wärmeausdehnungskoeffizienten und hoher Festigkeit, resultiert in einer hervorragenden Thermoschockbeständigkeit. Da SiC keine Oxidkeramik ist, bildet sich in oxidierender Atmosphäre an der Oberfläche eine inerte Schicht aus SiO_2 . Deshalb ist dieser Werkstoff insbesondere für die Anwendungen, die oxidierende Bedingungen beinhalten, sehr gut geeignet. Darüber hinaus gibt eine sehr hohe Emissivität diesem Werkstoff einen zusätzlichen Vorteil für die Porenbrenneranwendung.

Zirkoniumoxid (ZrO_2). Reines ZrO_2 existiert, abhängig von der Temperatur, in drei Kristallphasen. Bei hohen Temperaturen ($>2370^\circ\text{C}$)

besitzt das Material eine kubische Struktur. Bei mittleren Temperaturen (1170°C – 2370°C) bildet es eine tetragonale Struktur aus, die sich bei geringen Temperaturen (unter 1170°C) in eine monokline Kristallmodifikation umwandelt. Die Phasenumwandlung von einer tetragonalen in eine monokline Struktur erfolgt sehr schnell und ist von einem Volumenanstieg von 3% – 5% begleitet. Dieses Phänomen hat während der Abkühlung eine Zerstörung des ZrO₂ Materials zur Folge und begrenzt bedeutend seinen Anwendungsbereich. Einige Oxide wie z. B. MgO, CaO und Y₂O₃, die sich in Kristallstrukturen von Zirkoniumoxid lösen lassen, können die Kristallstrukturumwandlung verlangsamen oder eliminieren. Mit ausreichender Menge dieser Oxide kann sogar eine kubische Struktur bei Raumtemperatur erhalten bleiben. Obwohl dieser Werkstoff die höchste Betriebstemperatur der betrachteten Materialien aufweist, sprechen sowohl die vergleichsweise geringe Emissivität und Wärmeleitfähigkeit als auch der hohe Wärmeausdehnungskoeffizient gegen den Einsatz in der Verbrennungszone eines Porenbrenners.

Tabelle 2.1: Eigenschaften hochfeuerfester keramischer Werkstoffe [11, 12, 13]

Eigenschaft	Al ₂ O ₃	SiC	ZrO ₂
Dichte [g cm ⁻³]	3,99	3,15	5,5
Maximale Anwendungstemperatur [°C]	1900	1600	2300
Wärmeausdehnungskoeffizient (20 – 1000°C) [10 ⁻⁷ K ⁻¹]	83	49	100-130
Wärmeleitfähigkeit bei 20°C [W m ⁻¹ K ⁻¹]	20-30	80-150	2-5
Wärmeleitfähigkeit bei 1000°C [W m ⁻¹ K ⁻¹]	5	20-50	2-4
Gesamtemissionsgrad bei 2000K [-]	0,28	0,9	0,31

Porosität oder Hohlraumanteil stellt das Verhältnis von Hohlraumvolumen zu Gesamtvolumen eines Stoffes dar (Gl. 2.1) und ist eine der wichtigsten Kenngrößen, welche ein poröses, inertes Medium charakterisieren. Die Porosität ergibt sich aus Stegdicke, Zell- und Fenstergröße und hat bei Keramikschwämmen Werte zwischen

75 – 90% [8]. Die aus Metall hergestellten Schwammstrukturen besitzen sogar einen noch höheren Hohlraumanteil, der zwischen 90 – 95% liegt. Die Gesamtporosität der keramischen Schwämme, die sich aus der Masse und den Abmessungen der Schwammproben ergibt (Gl. 2.2), entspricht nicht nur dem für die Durchströmung freien Anteil. Vielfach wurde bei der Auswertung bildgebender Verfahren festgestellt, dass die Stege selbst nicht vollständig aus keramischem Material bestehen sondern einen Hohlraum umschließen, der im Herstellungsverfahren (Replikatechnik) begründet liegt (Abb. 2.1). Diese Hohlräume zählen als geschlossene Porosität – eine Porosität ähnlich der von Schäumen, da hier kein Fluid durchströmen kann. Deshalb unterscheidet man zwischen einer Gesamtporosität sowie offener und geschlossener Porosität, welche durch verschiedene Messverfahren ermittelt werden können.

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{Leerraum}}}{V_{\text{Gesamt}}} \quad (2.1)$$

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{PIM}} - V_S}{V_{\text{PIM}}} = 1 - \frac{\frac{m_{\text{PIM}}}{\rho_S}}{V_{\text{PIM}}} = 1 - \frac{\rho_{\text{PIM}}}{\rho_S} \quad (2.2)$$

Hierbei bezeichnet V_{Leerraum} den Volumenanteil, der im untersuchten Volumen V_{Gesamt} nicht vom Festmaterial eingenommen wird.

Spezifische Oberfläche ist eine häufig zur Beschreibung poröser Medien verwendete Kenngröße, welche die volumenbezogene Oberfläche eines Porenkörpers wiedergibt (Gl. 2.3).

$$S_V = \frac{A_S}{V_{\text{Gesamt}}} \quad (2.3)$$

Hierbei bezeichnet A_S die Oberfläche, die beide Volumenanteile (Fest-Hohlraum) voneinander trennt. Für den einfachsten Fall poröser Medien – Kugelschüttungen wird die spezifische Oberfläche analytisch gewonnen und es gilt:

$$S_V = \frac{6(1 - \varepsilon)}{D_{\text{Kugel}}} \quad (2.4)$$

Für komplexe Strukturen wie die der keramischen Schwämme kann eine ähnliche analytische Beziehung nicht angegeben werden. Eine Abschätzung ist jedoch durch postulieren einiger Strukturmodelle möglich. Etwas ausführlicher werden diese Mikrostrukturmodelle in Abschnitt 2.1.1.3 behandelt.

PPI-Zahl oder **Porendichte** („pores per inch“) ist insbesondere von Herstellerseite die gebräuchlichste Kenngröße von offenporigen Schwämmen, da sie einen Anhaltswert für die Feinporigkeit der Struktur gibt. Leider ist diese Größe vom

Messverfahren abhängig und unterscheidet nicht zwischen Zellen und Fenstern [8]. Traditionell bezieht sie sich nicht auf den keramischen Schwamm, sondern auf das Polymertemplat, aus dem er entstand. Dies gilt nur für die mittels Replikatechnik hergestellten Schwammstrukturen. Die durch die PPI-Zahl definierte Porendichte gilt aufgrund der nicht eindeutigen Festlegung des Begriffs der Pore als unzureichend definiert.

Herstellung

Die Eigenschaften keramischer werden durch das verwendete Herstellungsverfahren bestimmt. Daher werden in diesem Abschnitt die wichtigsten Methoden zur Herstellung keramischer Schwammstrukturen vorgestellt. Prinzipiell gibt es drei Möglichkeiten zur Herstellung der Schwämme, wie dies in Abb. 2.3 dargestellt ist: Das Aufschäumen von Keramiksuspensionen, die so genannte Platzhaltertechnik und das Beschichten von Polymerschwämmen mit Keramiksuspensionen zum Erzeugen einer Replik.

Das **Direktschäumen** oder die Blasenbildungstechniken beruhen auf der Erzeugung und nachfolgenden Konsolidierung einer Dispersion eines Gases in Form von Blasen innerhalb einer keramischer Suspension [14]. Dieses Herstellungsverfahren wird schematisch in Abb. 2.4 dargestellt. Mit dieser Methode werden Schwämme mit einem großen Anteil geschlossener Zellen und relativ geringer Porosität erzeugt.

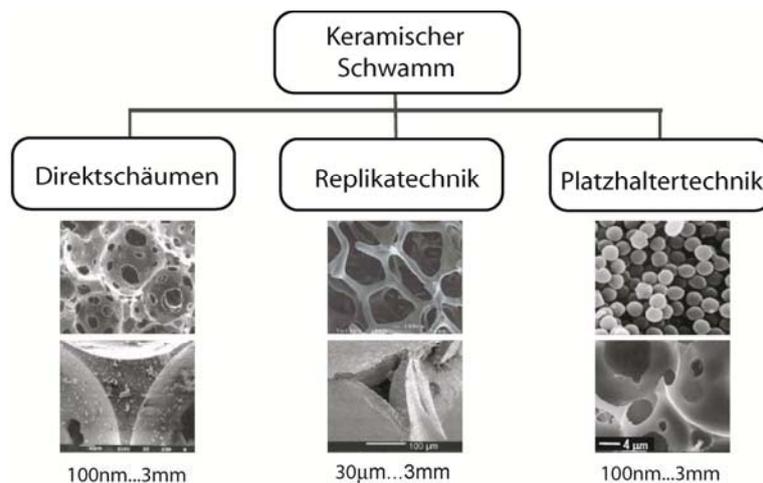


Abbildung 2.3: Herstellungsverfahren keramischer Schwämme und resultierende Schwammstrukturen [15]

Die **Platzhaltertechnik** basiert auf einem Replikationsprozess von Polymerkugeln, wobei die Hohlräume zwischen dicht gepackten Kugeln durch einen keramischen Schlicker ausgefüllt werden [14]. Die Polymerkugeln erfüllen dabei den Zweck eines ausbrennbaren Porosierungsmittels. Nach dem Trocknen und Vernetzen werden die Polymerkugeln ausgebrannt und die verbleibenden keramischen Schwämme bei hohen Temperaturen gesintert. Eine schematische Darstellung der Platzhaltertechnik und ein Beispiel einer aus diesem Verfahren resultierenden Struktur sind in Abb. 2.5 dargestellt.

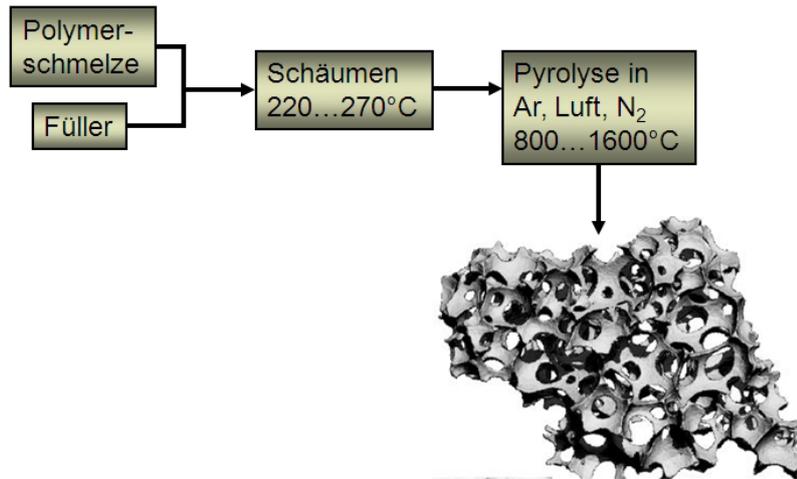


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung von Direktschäumen eines Silicons [15]

Die **Replikatechnik** schließt das Beschichten von Polymerschwämmen mit Keramiksuspensionen zum Erzeugen einer Replik ein. Hierbei werden Polymerschwämme (meist Polyurethanschwämme) mit dem keramischen Schlicker getränkt, danach mechanisch ausgepresst, um überschüssige Schlicker aus den offenen Poren zu entfernen und weiter getrocknet (Abb. 2.6). Nach dem Trocknen wird das Polymertemplat durch Verbrennen entfernt und anschließend der Keramikkörper durch Hochtemperaturesintern gefestigt. Bei diesem Verfahren hinterlässt das Ausbrennen des Polymerschwammes Hohlräume in den Stegen und Knoten. Solche Hohlräume sind z. B. in Abb. 2.1 deutlich erkennbar und wirken sich negativ auf die mechanischen Eigenschaften der Keramikschwämme aus. Die Replikamethode erlaubt, wenn sie optimal durchgeführt wird, die Fertigung offenzelliger Strukturen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden ausschließlich mittels Replikamethode hergestellte keramische Schwämme untersucht.

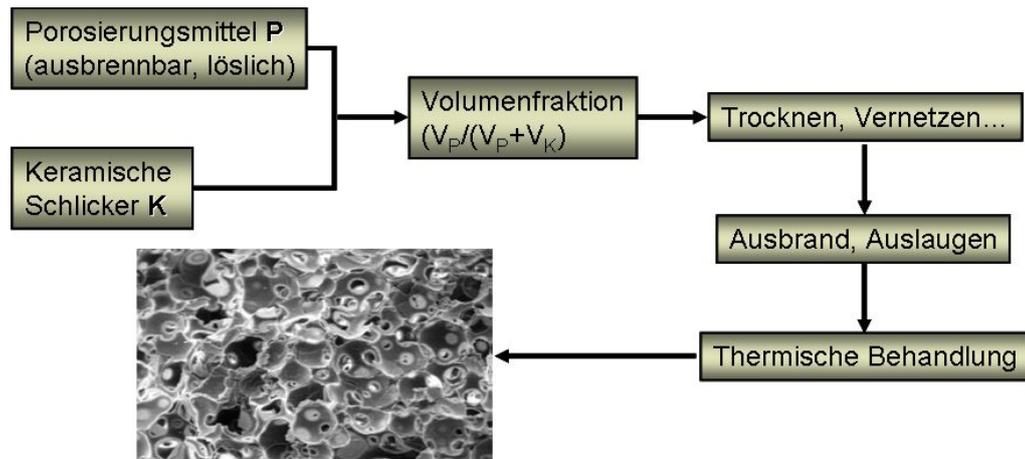


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Platzhaltertechnik [15]

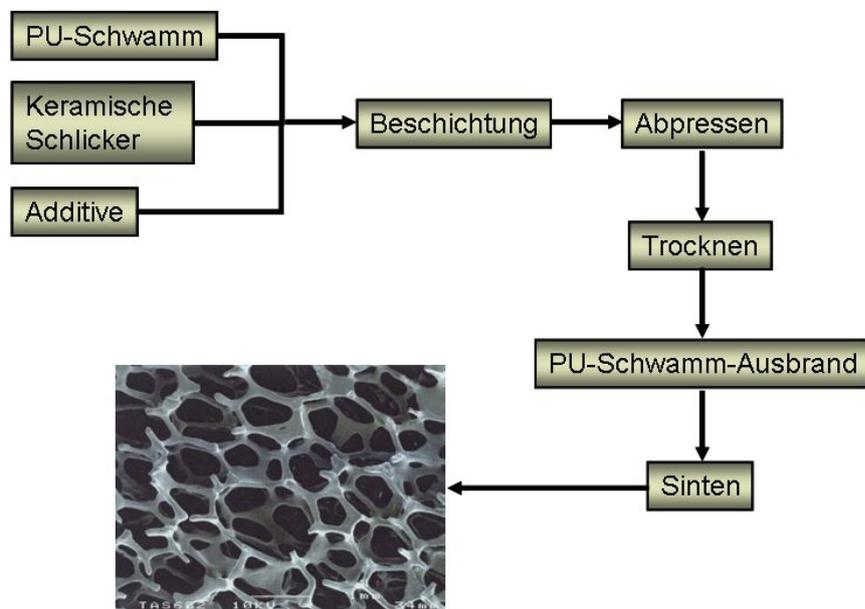


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der Replikatechnik [15]

2.1.1.2 Morphologische Charakterisierungen

Die nützlichen Eigenschaften der Schwämme hängen vom Material ab, aus dem sie gefertigt wurden, von ihrer Porosität und ihrer internen geometrischen Struktur [16]. Als charakteristische Eigenschaften keramischer Schwämme werden in der

Literatur geometrische und topologische Parameter wie z. B. Steglängen, Porengröße, Fläche der Porenverbindungen (Fenster), Anzahl der Stegverbindungen pro Knoten, Winkel zwischen den Stegverbindungen genannt. Zusätzlich zu den geometrischen Parametern der Mikrostruktur werden globale geometrische Parameter wie Porosität sowie die volumenbezogene oder spezifische Oberfläche für die Charakterisierung verwendet [8]. In diesem Abschnitt wird ein Überblick über die möglichen Methoden zur Erfassung einzelner Parameter der Schwammstrukturen gegeben.

Bestimmung der topologischen Merkmale

Der typischerweise verwendete charakteristische Parameter der Schwammgeometrie ist der Porendurchmesser, der mit der Porendichte direkt korreliert. Wie im Abschnitt 2.1.1.1 schon diskutiert, gilt die PPI-Zahl als der vom Hersteller gelieferte Angabeparameter als schlecht definiert. Aus diesem Grund treten immer wieder sehr große Abweichungen zwischen dem so genannten nominalen Porendurchmesser, der sich aus der Porendichte ergibt ($1/PPI$), und dem gemessenen mittleren Porendurchmesser auf. Darüber hinaus wird in der Literatur oft nicht klar angedeutet was der Begriff „Porendurchmesser“ beinhaltet: Fenster- oder Zellendurchmesser. Das herkömmliche Verfahren zur Bestimmung dieser und anderer geometrischer Größen ist die Bilderfassung in Begleitung der Bildanalyse. Üblicherweise werden die Bilder der Schwammstruktur anhand von Licht-Mikroskopie erfasst [10, 17, 18, 19]. In [18] wurden für diesen Zweck die Schwammproben als dünne Scheiben (4-6 mm) vorbereitet. Hierbei wird als Porengröße der Fensterdurchmesser gewählt und unter Berücksichtigung der elliptischen Form der Fenster wurden jeweils zwei Durchmesser - der kleinste und der größte - gemessen. Die Auswahl des Fensters als die charakteristische Größe kann durch das Messverfahren begründet werden, da diese Geometrie optisch einfacher zugänglich ist. Es besteht die Möglichkeit, während des Messens zu sichern, dass die gemessenen Fenster immer in der Ebene der Bildaufnahme liegen und gut fokussiert sind, um die Verfälschung der Messergebnisse aufgrund der Dreidimensionalität der Struktur zu vermeiden. Ein Beispiel eines durch die Licht-Mikroskopie erfassten Bildes mit angezeigter Bestimmung der geometrischen Parameter ist in Abb. 2.7 gegeben. Ein weiterer Parameter, der sich anhand der Bildanalyse gut ermitteln lässt, ist der Stegdurchmesser. In Abb. 2.7 erkennt man, dass die Stege nicht zylindrisch sind, sondern ihre Dicke von der dicksten Stelle am Knoten bis zur Mitte variiert. Daher wird der Stegdurchmesser immer an der dünnsten Stelle gemessen, um eine einheitliche Messung zu sichern. Die repräsentativen Ergebnisse für den Poren- und Stegdurchmesser werden durch die große Anzahl gemessener geometrischer Elemente einer Schwammprobe gesichert. Hierdurch werden die Verteilungen entsprechender Größen gewonnen. Weiterhin können durch die Analyse mittels Licht-Mikroskopie aufgenommener Bilder andere geometrische Merkmale der Schwammstruktur wie z. B. Zellendurchmesser und

Steglänge ermittelt werden. Die Abbildung 2.8 zeigt eine schematische Darstellung charakteristischer Maße der Schwammgeometrie: Zellendurchmesser (d_c), Fensterdurchmesser (d_F), Stegdicke (t) und Steglänge (l), die anhand von Bilderfassung und Bildanalyse gewonnen werden können.

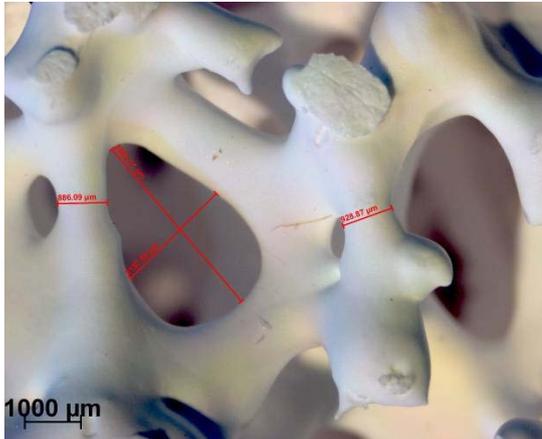


Abbildung 2.7: Bestimmung von Steg- und Porendurchmesser eines 10 PPI Al_2O_3 -Schwammes mit einer Porosität von 85% anhand von Light-Mikroskopie

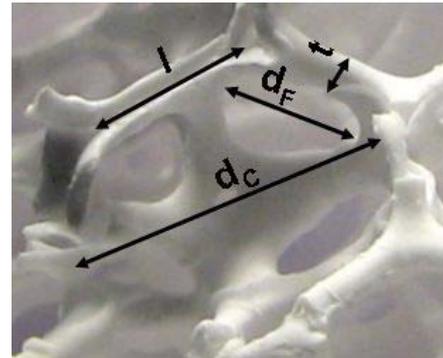


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung charakteristischer Maße der Schwammgeometrie

Neben der beschriebenen Methode zur Bestimmung morphologischer Größen der Schwämme findet man in der Literatur auch andere Lösungen für Bildanalysen, wie z.B. die **2D Image Analysis** von Philipse und Schram [20]. Hierbei wurden die Schwämme in Gießharz eingetaucht, und nach dem Aushärten wurde eine 1 mm dicke Scheibe aus der Probenoberfläche ausgeschnitten. Porenquerschnitte und äquivalente Kreisdurchmesser konnten für die durchschnittenen Poren bestimmt werden. Die erhaltenen Porengrößenverteilungen wurden zum Vergleich verschiedener Schwämme angewandt. Es wurde kein Versuch gemacht, die gewonnenen Daten in dreidimensionale Verteilungen umzuwandeln.

Außerdem ist eine weitere Möglichkeit durch Generierung einer Struktur mit der Anwendung digitaler, bildgebender Verfahren wie z. B. der Computertomografie, gegeben. In [21] wurde dieses Verfahren angewandt, allerdings nur, um ein 2D-Bild einer dünnen Schwammprobe zu erzeugen. Es wurde gezeigt, dass die mittels dieses Verfahrens gewonnene Porengrößenverteilung sehr stark von der Probendicke abhängt. Darüber hinaus wird dieser Effekt stärker mit Erhöhung der Porengröße. Dieses Phänomen lässt sich dadurch erklären, dass die Zellen unter der Bildebene auch aufgenommen werden. Je größer die Poren sind, desto mehr Poren, die sich in anderen Ebenen befinden, erscheinen auf dem Bild. Dies hat eine virtuelle Reduktion der Porengröße zur Folge. Mit Erhöhung der Porengröße werden zusätzlich die Zellengrenzen weniger ausgeprägt, was in einer Koaleszenz der Poren resultiert.

Bestimmung der makroskopischen Parameter

Die **Porosität** der mittels Replikamethode hergestellten Schwämme wird unterteilt in Gesamtporosität und offene und geschlossene Porosität, wie schon in Abschnitt 2.1.1 diskutiert. Die Gesamtporosität kann einfach durch das Wiegen einer Schwammprobe mit bekannten Maßangaben bestimmt werden (siehe Gl. 2.2). Zusätzlich ist die Ermittlung der Feststoffdichte erforderlich. Dies geschieht üblicherweise mittels Pyknometrie. Das Messprinzip der Pyknometrie beruht auf dem archimedischen Prinzip. Der pulverisierte Werkstoff wird in einem Pyknometer gewogen. Das Pyknometer besteht aus einem Glaskolben mit einem speziell geschliffenen Stopfen, der einen dünnen vertikalen Durchlass (Kapillare) enthält. Aus der Masse des leeres Pyknometers und der Masse des Pyknometers zusammen mit dem Feststoff wird die Masse des Feststoffes bestimmt. Danach wird das Pyknometer mit einer Flüssigkeit bekannter Dichte, in welcher sich der Feststoff nicht löst (z. B. Wasser oder Ethanol), gefüllt. Aus der Masse der verdrängten Flüssigkeit lässt sich die Dichte des Feststoffes bestimmen. He-Pyknometrie kann auch für die Bestimmung der Schwammporosität verwendet werden, allerdings nur der Gesamtporosität, da die Größe der Heliumatome das Füllen von Poren bis zu einer minimalen Größe von ca. 0,1 nm ermöglicht. In diesem Fall wird die Änderung des Heliumdruckes im bekannten Meßzellenvolumen vor und nach Einbringung der Probe gemessen und somit das Volumen des Feststoffgerüsts bestimmt.

Die hydrodynamisch relevante, offene Porosität lässt sich mittels Quecksilberporosimetrie erfassen [18]. Die Technik beruht auf der Intrusion einer nicht benetzenden Flüssigkeit wie z.B. Quecksilber in ein poröses System bei angelegtem Druck. Mit Hilfe der Washburn-Gleichung kann aus dem Druck die entsprechende Porenweite berechnet werden:

$$d_{pore} = -4 \frac{\gamma \cdot \cos \Theta}{p} \quad (2.5)$$

Hierbei bezeichnet γ die Oberflächenspannung und Θ steht für den Benetzungswinkel. Quecksilberporosimetrie dient zur Bestimmung sowohl der gesamten als auch der offenen Porosität, abhängig von dem ausgeübtem Druck. Unter atmosphärischem Druck bestimmt man die offene Porosität. Da die Steghohlräume einen Durchmesser zwischen 50 und 200 μm aufweisen, ist ein höherer Druck notwendig, um alle Leerräume in einem Schwamm zu füllen und die Gesamtporosität zu bestimmen. In [18] wurde zur Bestimmung der Gesamtporosität bzw. offenen Porosität ein Druckbereich von 0,007 – 1000 bar verwendet.

Die zuvor erwähnten Methoden für die Volumenbilderanalyse eignen sich gut zur Bestimmung der offenen Porosität, wobei die dreidimensionale Mikrostruktur anhand von MRI (Magnet Resonance Imaging), CT (Computer Tomographie) usw. erfasst wird. Durch eine geschickte Bildbearbeitung können die Steghohlräume ausgefüllt werden, sodass sie nicht mehr zur Porosität zählen. Eventuelle

Anwendung der vorher beschriebenen Technik von Innocentini et al. [21] zur Bestimmung der offenen Porosität führt zu einer Abweichung von der tatsächlichen Probenporosität, wobei die zweidimensionalen Bilder der porösen Matrix aufgenommen wurden. Die so bestimmte Querschnittsporosität (2D-Porosität) entspricht nicht der volumetrischen (3D-)Porosität eines porösen Körpers.

Die spezifische Oberfläche ist eines der wichtigsten geometrischen Merkmale der Schwammstrukturen. Jedoch ist sie für keramische Schwämme experimentell schwierig ermittelbar. Üblicherweise erfolgt die Bestimmung der volumenbezogenen geometrischen Oberfläche poröser Körper als BET-Oberfläche. Die von Braunauer/Emmett/Teller entwickelte Theorie (BET-Theorie) basiert auf der Aufnahme von Stickstoffadsorptionsisotherme [22]. Diese Theorie beinhaltet Bildung von Multilagenn während der N_2 -Adsorption auf einer Fläche. Dabei wird angenommen, dass sich eine monomolekulare Schicht gemäß der Langmuir-Theorie (Gl. 2.6) ausbildet. Auf die erste Schicht können weitere Schichten kondensieren, für die die Gesetzmäßigkeiten reiner kondensierter Stoffe gelten. Im thermischen Gleichgewicht müssen die Verdampfungs- und Kondensationsgeschwindigkeiten gleich sein.

$$\Theta = \frac{n_{ad}}{n_{mo}} = \frac{b \cdot p_i}{1 + b \cdot p_i} \quad (2.6)$$

Der in Gl. 2.6 eingeführte Belegungsgrad Θ ist als Verhältnis zwischen der adsorbierten Menge des Gases n_{ad} und der Stoffmenge einer Monolage n_{mo} definiert. Der Adsorptionskoeffizient ist mit b bezeichnet und p_i ist der Partialdruck des Gases.

Die Gleichung für die BET-Isotherme ist mit der Gl. 2.7 bzw. Gl. 2.8 gegeben:

$$n_{ad} = \frac{n_{mo} C \frac{p_i^S}{p_i}}{\left(1 - \frac{p}{p_0}\right) \left[1 + (C-1) \frac{p}{p_0}\right]} \quad (2.7)$$

oder

$$\frac{\frac{p_i^S}{p_i}}{n_{ad} \left(1 - \frac{p}{p_0}\right)} = \frac{1}{n_{mo} C} + \frac{(C-1) \frac{p_i^S}{p_i}}{n_{mo} C} \quad (2.8)$$

mit

$$C = \frac{a_1 b}{ab_1} \cdot \exp\left[\frac{E_{ds} - E_{vd}}{RT}\right] \quad (2.9)$$

Die Geschwindigkeitskoeffizienten der Kondensation und Verdampfung sind mit a bzw. b gegeben. E_{vd} bezeichnet die Verdampfungswärme bei der Desorption der Moleküle von den höheren Schichten und E_{ds} bezeichnet die Desorptionswärme der ersten Schicht. p_i^S stellt den Sättigungsdampfdruck des Gases dar. Im Grenzfall $C \gg 1$ gilt $E_{ds} \gg E_{vd}$, d.h. die Adsorption auf der zweiten Schicht tritt erst ein, wenn die erste Schicht aufgefüllt ist. Für $C \gg 1$ und $p_i \ll p_i^S$ geht die BET-Isotherme in die Langmuir-Isotherme (Gl. 2.6) über.

Durch die Auswertung der gemessenen Adsorptionskurven mit der Gl. 2.8 erhält man die Stoffmenge n_{mo} , welche nach der BET-Theorie der Stickstoffmenge entspricht, die für eine monomolekulare Beschichtung erforderlich ist. Die für ein Stickstoffmolekül benötigte Fläche ist $16,2 \text{ \AA}^2$. Aus diesem Wert kann die spezifische Oberfläche der Probe bestimmt werden.

Obwohl die spezifische Oberfläche fester Schwämme oft mittels BET-Adsorptionsisothermen bestimmt wurde [10], ist diese Methode aufgrund sehr hoher Rauigkeit der Schwammoberfläche nicht zu empfehlen [17,18]. Deshalb sind für den vorliegenden Zweck die Techniken der Volumenbilderfassung erforderlich. Dabei wird eine detailgenaue diskrete Form einer Struktur mit der Anwendung digitaler, bildgebender Verfahren wie z. B. der Computertomografie (CT) oder der Magnetresonanztomographie (MRI – Magnetic Resonance Imaging) erzeugt. Ein Beispiel der Bestimmung volumenbezogener Oberfläche eines Schwammes ist an einer aus MRI-Daten rekonstruierten Mikrostruktur von Habisreuther et al. demonstriert [23]. In diesem Fall waren die aus MRI-Messungen eines keramischen Alumina-Schwammes mit 45 PPI gewonnenen Bilddaten der Ausgangspunkt für die Rekonstruktion der realen Schwammstrukturen. Diese Bilddaten lagen in einem gleichförmigen 3-dimensionalen Raster mit einer Auflösung von $50 \mu\text{m}$ in jede Raumrichtung pro Voxel vor. Die Größe des untersuchten Probenstücks betrug ca. $10 \times 6 \times 6 \text{ mm}^3$. Zur Generierung eines Rechengitters, das den Leerraum im Schwamm umfasst, war zuerst die Rekonstruktion der Schwammoberfläche erforderlich. Anhand dieser Daten konnte in einem zweiten Schritt mit einem Standardprogramm der Leerraum innerhalb der Schwammgeometrie mit einem Rechengitter aus Tetraederelementen gefüllt werden.

Die Rekonstruktion der Strukturoberfläche aus den MRI-Bilddaten wurde mit der Programmbibliothek VTK („visualization toolkit“) von Kitware Inc. [24] in mehreren Schritten durchgeführt:

1. Bildverbesserung: 4x4x4 Medianfilter zur Reduktion des Pixelrauschens (Abb. 2.9a-b),

2. Bestimmung eines Schwellwertes zur Unterscheidung Feststoff/Hohlraum anhand des lokalen Minimums im Grauwert histogramm (Abb. 2.9c,d),
3. Berechnung einer Isofläche, wobei der konstante Wert dem Schwellwert entspricht (Triangulation, Abb. 2.9e).

Ergebnis dieser Vorgehensweise ist eine geschlossene, 3-dimensionale Oberfläche des Schwamms, die durch Dreiecksflächen diskretisiert ist.

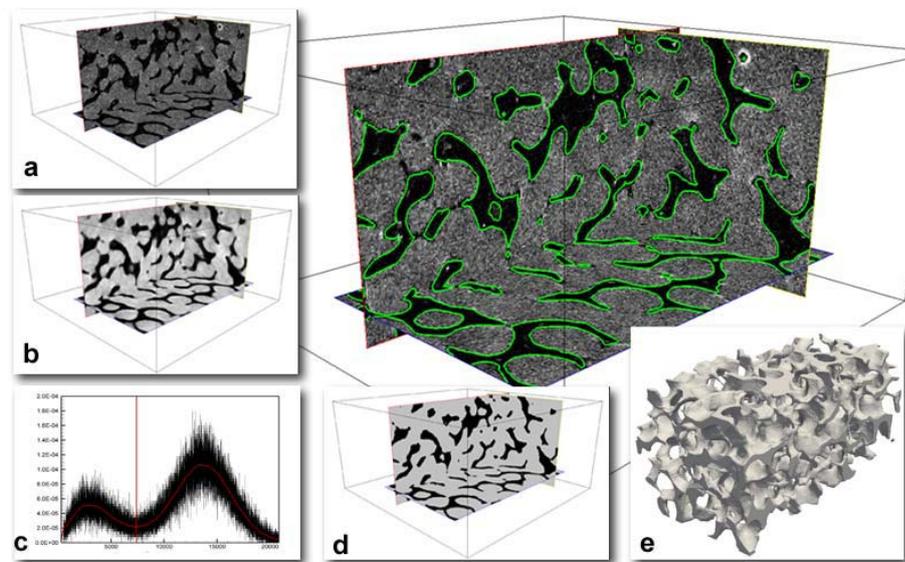


Abbildung 2.9: Restauration der Schwammoberfläche (grün) durch digitale Bildverarbeitung aus einem tomografischen Bild (a: Original; b: Median-gefiltert; c: Grauwert histogramm; d: binarisiert; e: triangulierte Isofläche) [23].

Auf Grundlage der diskretisierten Oberfläche und der Gesamtabmessung konnte durch einfaches Aufsummieren der in der Oberfläche enthaltenen Dreiecksflächen die spezifische Oberfläche der Schwammstruktur bestimmt werden. Nach dem Auffüllen des in der Oberfläche enthaltenen Volumens mit Tetraederelementen war zudem die Berechnung des Feststoffvolumens ebenfalls durch Aufsummieren der Tetraedervolumina möglich. Weiterhin ergibt sich die offene Porosität des Schwammes aus dem Feststoffvolumen und dem Volumen der analysierten Probe.

2.1.1.3 Modellierung der Schwammstruktur

Das Verhalten der Schwammstrukturen ist unter den für technische Anwendungen interessanten Bedingungen oft schwierig experimentell zu untersuchen. Aus diesem Grund wurde in der Vergangenheit viel Aufwand geleistet,

um diese Strukturen zu modellieren. Darüber hinaus ist durch ein Modell, das die reale Schwammstruktur gut wiedergibt, eine einfache Möglichkeit geschaffen, den Einfluss der Variationen der morphologischen Merkmale auf die für den industriellen Einsatz relevanten Prozesse zu untersuchen. In den bis heute veröffentlichten Studien findet man zahlreiche Modelle der Schwammstruktur unterschiedlicher Komplexität. In diesem Abschnitt soll auf die Modellierung der Mikrostruktur der Schwämme näher eingegangen werden. Es werden verschiedene Modelle und ihre bis jetzt untersuchte Anwendungen vorgestellt und diskutiert.

Am wenigsten komplex sind die Methoden, welche die poröse Struktur mit einem einfachen geometrischen Modell darstellen, das eine mathematische Gewinnung der gewünschten Parameter ermöglicht. Diese analytische Modellierung der verschiedenen Phänomene in keramischen Schwämmen erfordert eine Vereinfachung der porösen Struktur durch die Annahme einer einfachen geometrischen Zellform, wie z. B. eines Oktaeder-Modells [25] oder einer gestreckten, kubischen Zellform [26]. Beide Modelle wurden für die Untersuchung der mechanischen Eigenschaften eingesetzt. Ein Beispiel wäre auch das Modell von Du Plessis [27], welches die poröse Struktur durch drei quadratische Kanäle darstellt, die jeweils senkrecht zueinander stehen. Dieses Modell wurde verwendet, um die Durchströmung durch die Schwammstrukturen zu modellieren, und es wurde eine Gleichung für die Strömungstortuosität als Funktion der Porosität abgeleitet. Ausgewählte Beispiele analytischer Modelle sind in Abb. 2.10 aufgezeigt. Diese vereinfachten Modelle helfen zwar beim Verständnis von Phänomenen, die mit monolithischen Schwammstrukturen zusammenhängen, es ist aber sehr unwahrscheinlich, dass eine derart vereinfachte Geometrie die Realität komplexer Strukturen, wie sie bei offenporigen keramischen Schwammstrukturen vorliegen, mit ausreichender Genauigkeit wiedergibt.

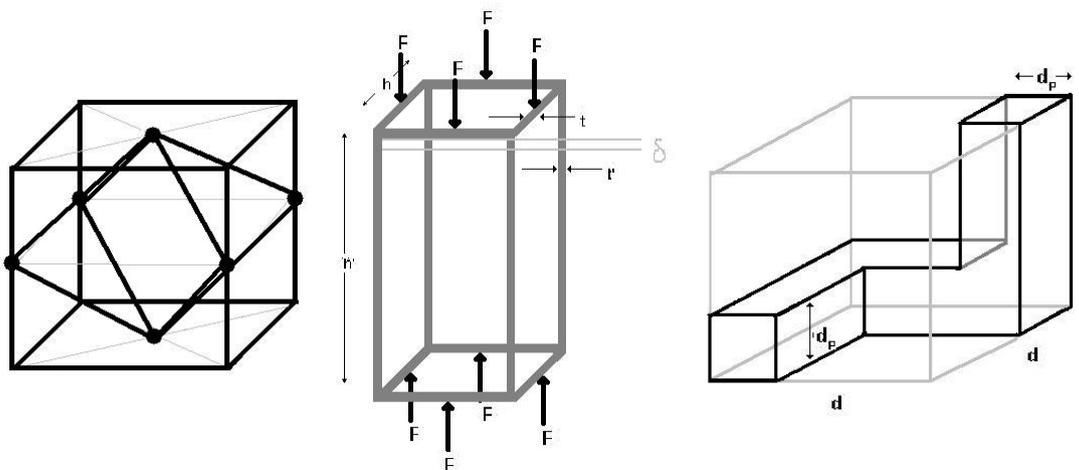


Abbildung 2.10: Ausgewählte analytische Modelle der monolithischen Schwämme: Oktaeder Modell (links) [25]; gestreckter Kubus (Mitte)[26]; Modell von Du Plessis [27]

Als weitere Möglichkeiten wird sowohl der Weg über die künstliche Generierung eines Mikrostrukturmodells besprochen als auch der über die Generierung der Mikrostrukturgeometrie anhand einfacher Einheitselemente. Auch dafür werden zwei grundsätzliche Vorgehensweisen angewandt: Modelle mit geordneter Zellstruktur („deterministic unit-cell models“) oder die Anwendung stochastischer Modelle.

Als Anhaltspunkt für die Entwicklung erster Modelle, welche die Struktur sowohl offenporiger als auch geschlossenporiger Schäume darstellen, diente die stabile Struktur von Seifenblasen in trockenem Schaum (Abb. 2.1b). Im 19. Jahrhundert wurden vom dem belgischen Physiker Joseph Plateau aufgrund seiner experimentellen Beobachtungen die Regeln aufgestellt, die die Seifenblasenstruktur beschreiben.



Abb. 2.11: Schematische Darstellung der Plateaus Regeln

Plateaus Regeln besagen:

1. In einer Kante des Schaums treffen immer drei Flächen der Seifenblasen in einem Winkel von 120° aufeinander und bilden so eine *Plateau-Kante*.
2. An einem Knoten treffen jeweils vier Plateau-Kanten unter einem Winkel von etwa $\cos^{-1}(-1/3) \approx 109,47$ (dem Tetraederwinkel) aufeinander.

Die schematische Darstellung von Plateaus Regeln ist in Abb. 2.11 gezeigt. Anordnungen von Seifenblasen, die nicht den Plateau-Regeln entsprechen, sind instabil. Der Schaum tendiert dazu, sich umzugestalten, um den Regeln zu entsprechen. Die Erkenntnisse von Plateau dienten als Basis für die weitere Entwicklung von Einheitszellenmodellen der Schaumstruktur.

Ein Strukturmodell auf der Basis monomerer Einheitszellen (Abb. 2.12) ist die Kelvin-Struktur [28], die lange Zeit als optimale Beschreibung für reale geschlossenporige Schäume galt. Die Kelvin-Struktur, die aus einzelnen Tetrakaidekaedern (Vierzehnflächnern) besteht, wurde als optimale Struktur betrachtet, um den Raum in Zellen gleichen Volumens mit minimaler Grenzfläche und damit auch minimaler Oberflächenenergie zu unterteilen. Diese Modellstruktur wurde in der Literatur ausführlich beschrieben und für die Analyse poröser Strukturen angewandt (z. B. [29, 30, 31, 32]). Für die Bestimmung des Elastizitätsmoduls der geschlossenen zellulären Strukturen wurde das Kelvin-Modell in [32] eingesetzt. Darüber hinaus wurden anhand dieses Modells Steifigkeit und Festigkeit der offenporigen Schäume [30] und elastische Steifigkeit der geschlossenen zellulären Materialien [31] modelliert. Weiterhin war es möglich, dank der gut definierten Geometrie der Kelvin-Packung eine Beziehung für die Abschätzung der spezifischen Oberfläche fester Schwämme zu gewinnen [33]:

$$S_V = \frac{4,82}{d_F + t} \sqrt{(1 - \varepsilon)} \quad (2.10)$$

Der Fensterdurchmesser und die Stegdicke sind mit d_F bzw. t gegeben.

1993 wurde von Weaire und Phelan eine Struktur berechnet, welche die Bedingung minimaler Grenzfläche besser als die Kelvin-Struktur erfüllt. Diese Einheit besteht aus acht Zellen, die aus zwei prinzipiellen Typen bestehen: ein irregulärer pentagonaler Dodekaeder und ein Vierzehnflächner (Tetrakaidekaeder) mit zwölf pentagonalen und zwei hexagonalen Flächen. In einer Einheit sind jeweils zwei Dodekaeder und sechs Tetrakaidekaeder angeordnet. Die Zellzentren sind in einer so genannten A15 Anordnung positioniert [34, 35, 36] (Abb. 2.12). Die Oberfläche der Weaire-Phelan-Struktur ist um ca. 0.3% kleiner als die der Kelvin-Struktur mit gleichem Volumen, womit sie auch das Prinzip der minimalen Oberflächenenergie besser erfüllt. Nach [29] stellt sie bezüglich dieses Kriteriums die beste zurzeit bekannte Modellstruktur für Schäume dar.

Obwohl aus den Prinzipien der geschlossenporigen Seifenblasenstruktur entwickelt, sind beide Modelle als Basis für die Beschreibung der Mikrostruktur offenporiger Schwämme möglich. Jedoch ist der Aufwand für die Generierung der WP-Struktur etwas größer. Für die Modellierung von offenporigen Strukturen werden, ausgehend von den Flächenmodellen, die Flächenbegrenzungen (Kanten) durch Verbindungen (Stege) ersetzt (s. Abb. 2.12).

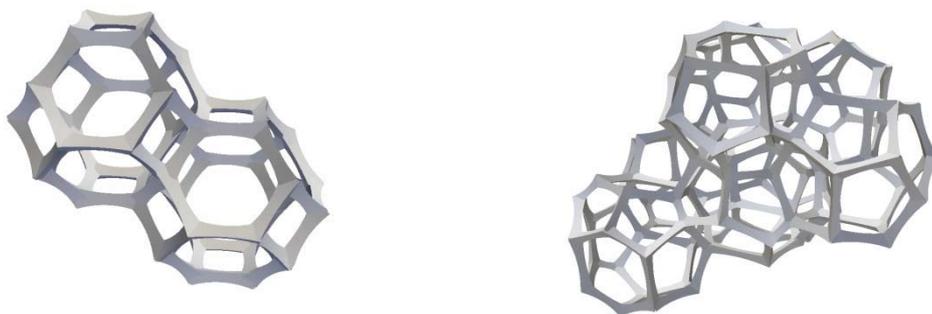


Abbildung 2.12: Kelvin Struktur (links) und Weaire-Phelan Struktur (rechts) für offenporige Schwämme.

Ein entscheidender Nachteil der Einheitszellenmodelle ist, dass sie die typischen natürlichen Variationen der Mikrostruktur monolithischer Schwämme nicht berücksichtigen [36]. Um diese strukturelle Unordnung einzubeziehen, verwenden viele Autoren Modelle, die auf der Grundlage von Voronoi-Mosaiken und einer zufälligen Verteilung von Startpunkten im Raum arbeiten. Eine Zelle wird dabei definiert durch den Raum, der näher an einem speziellen Startpunkt ist als an allen

anderen. Der Betrag der Unordnung einer solchen Struktur hängt dann von der räumlichen Verteilung der Startpunkte ab. Die auf Voronoi-Mosaiken basierten Strukturen sind breit in der Literatur eingesetzt, allerdings nur zur Bestimmung der mechanischen Eigenschaften, wie beispielsweise in [16, 31, 32, 36, 37, 38, 39] zu finden ist. Ein weiteres Modell anhand eines Gauss'schen Zufallsfeldes wurde in [16] für die Bestimmung der elastischen Eigenschaften von dreidimensionalen offenporigen Monolithen angewendet. Ein gravierender Nachteil dieser Strukturen ist jedoch in der Topologie der Voronoi-Zellen zu finden: Es entsteht pro Knotenpunkt im Vergleich mit realen Strukturen häufig eine zu hohe Anzahl von Verbindungsstegen.

2.1.2 Strömungsdynamische/Technische Parameter

Aufgrund ihrer hervorragenden Eigenschaften (hohe Porosität, große spezifische Oberfläche, geringer Strömungswiderstand und hohe mechanische Stabilität) besitzen offenporige keramische Schwämme ein weites Anwendungsspektrum z. B. als Filter für heiße Abgase, thermische Isolation, Träger für Katalysatormaterialien, medizinische Implantate, Porenbrenner usw. Noch steht der breiten kommerziellen Nutzung von keramischen Schwämmen entgegen, dass die quantitative Beschreibung der Transportphänomene in solchen Strukturen bislang auf semi-empirische Korrelationen beschränkt ist. Zudem wurden diese Korrelationen meist für andere Strukturtypen wie z.B. Schüttungen abgeleitet und sind daher nur mit eingeschränkter Genauigkeit anwendbar.

Zur Übersicht wurden die aus der Literatur bekannten verschiedenartigen Ansätze zur Erfassung der wichtigsten Parameter von zellulären Porenkörpern in Abb. 2.13 dargestellt und systematisiert. Grundsätzlich existieren drei Hauptmethoden für die Charakterisierung solcher Strukturen: Anwendung analytischer Modelle, numerische Simulation und direkte experimentelle Ermittlung der charakteristischen Parameter.

Da die analytische Modelle schon im Abschnitt 2.1.1.3 diskutiert wurde, wird in diesem Kapitel näher auf die anderen Methoden eingegangen. Für die numerische Simulation der fluiden Transportprozesse in der Mikrostruktur zellulärer Materialien sind verschiedene Berechnungsmethoden verfügbar. Eine Möglichkeit der Berechnung stellt die sehr aufwändige Lattice-Boltzmann Methode (LBM) dar, bei der die Molekularkinetik durch statistische Methoden direkt simuliert wird. Manz et al. [40] benutzten LBM-basierte Simulationen, um die Strömung durch eine randome Kugelschüttung zu berechnen. Humby et al. [41] haben die Permeabilität von NMR basierter 3D-Rekonstruktion einer Kugelschüttung anhand von LGA (*lattice-gas automata*), Vorläufer von LBM, bestimmt. In [42] wurde die Strömung durch die

Sandsteinkernprobe mit Anwendung der LBM-Methode simuliert. Weiterhin wurden LBM-Simulationen der Strömung in den aus 3D-CT-Daten rekonstruierten Strukturen von sowohl randomen Packungen [43, 44] als auch keramischen Schwämmen [44], eingesetzt.

Besser verfügbar sind die Methoden der „Finiten Elemente Modellierung“ (FEM) und der „Finiten Volumen Modellierung“ (FVM), wobei sowohl FEM als auch FVM in kommerziellen CFD („computational fluid dynamics“) Programmen verfügbar sind. Maruyama et al. [45] haben eine Finite Elemente-Analyse angewandt, um die mechanischen und thermischen Eigenschaften eines Kohlenstoffschaums auf Pechbasis zu bestimmen. Permeabilität und Leitfähigkeit eines Fontainebleau-Sandsteines wurden in [46] mittels einer Finiten Differenzen-Methode ermittelt. Ein Vergleich zwischen FVM- und LBM-Methoden wurde an einer einfachen synthetischen Struktur in [43] demonstriert, die sich aus rechteckigen Kuben, platziert in einem Kanal, zusammensetzt. Beide Methoden führten zur gleichen Lösung, allerdings die LBM-Methode bei viel größerem Gitter. Jedoch ist die Bestimmung geeigneter Anfangs-, Einlass- und Auslassrandbedingungen immer noch ein kritischer Punkt für die LBM-Methode. Weiterhin sind die „multi-grid“-Methoden und die schnelle Dämpfung von niederfrequenten Schwingungen für die finiten Volumen Codes üblich. Diese numerischen Optimierungen sollen für die LBM in Zukunft erreicht werden, um diese Methode gegenüber den FV-Codes konkurrenzfähig zu machen [43].

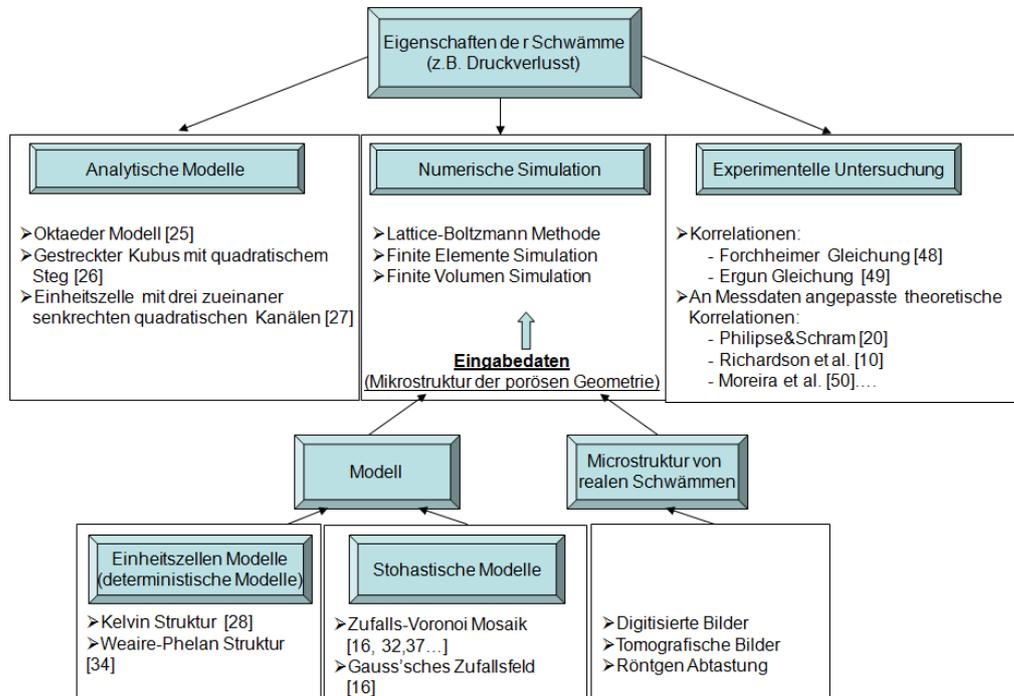


Abbildung 2.13: Systematische Darstellung von Methoden für die Beschreibung der Eigenschaften von Schwämmen.

Unabhängig davon, welche Methode der numerischen Simulation gewählt wird, ist es erforderlich, die poröse Mikrostruktur zu diskretisieren und die Geometrie der Simulation als Eingabe zur Verfügung zu stellen (s. Abb. 2.13). Eine Möglichkeit ist die Erfassung der dreidimensionalen Struktur realer poröser Körper mittels digitaler bildgebender Verfahren wie z. B. der Computertomografie oder der Magnetresonanztomographie. Als weitere Möglichkeiten werden Modelle mit geordneter Zellstruktur („deterministic unit-cell models“) oder stochastische Strukturmodelle benutzt. Sowohl die verschiedenen Formen dieser Modelle als auch ihre Vor- und Nachteile wurden in Abschnitt 2.1.1.3 erörtert.

In Ergänzung der theoretischen Beschreibung von Schwämmen aufgrund von Modellen oder mit numerischer Simulation beschäftigen sich viele Untersuchungen mit der messtechnischen Erfassung sowohl der Mikrostruktur als auch globaler Schwammparameter wie z.B. dem spezifischen Druckverlust (siehe Abb. 2.13). In Bezug auf die Bestimmung des Druckverlustes kann eine häufig angewendete Vorgehensweise besonders hervorgehoben werden: Die meisten Autoren entwickeln Modelle für die Durchlässigkeit (proportional zum Kehrwert des Druckverlustes) von offenporigen Schwammstrukturen durch Anpassung von Korrelationen. Diese Korrelationen wurden ursprünglich für die Beschreibung von Partikelpackungen durch Anpassung an Messwerte bestimmt.

Die meisten Veröffentlichungen beschäftigen sich entweder mit der Entwicklung von Modellen oder deren Anwendung auf mechanische Eigenschaften der Schwammstrukturen. Untersuchungen mit Fokus auf die strömungsmechanischen Eigenschaften dagegen sind selten. Im Gegensatz dazu gibt es einige Untersuchungen, die auf experimenteller Basis Transporteigenschaften der festen Schwämme bestimmen. Insbesondere der Druckverlust ist aufgrund seiner vergleichsweise einfachen Zugänglichkeit eine häufig bestimmte Eigenschaft.

2.1.2.1 Druckverlust

Die Strömung eines inkompressiblen Fluids durch ein isotropes poröses Medium ist ein physikalisches Phänomen von großer Bedeutung in der Ingenieurwissenschaft. Die erste Gleichung zur Beschreibung des Druckverlustes in porösen Medien ist das Darcy-Gesetz von 1856 [47], das analog zum Fouriers'schen Gesetz und Fick'schen Gesetz ist. Es beschreibt eine eindimensionale Strömung durch ein poröses Medium (z.B. Sand). Als eine spezielle Lösung der Navier-Stokes-Gleichung postuliert das Darcy-Gesetz eine lineare Abhängigkeit für den viskosen Impulsverlust bei der Filtration. Es besagt, dass die Fluidmenge pro Ziteinheit \dot{V} [m³/s], die eine Fläche A in einem porösen Medium laminar durchströmt, proportional zum negativen Druckgradienten ist (Gl. 2.11), oder, wie man es heutzutage üblicherweise in der Literatur findet, dass der auf die Länge bezogene Druckverlust proportional zur Leerrohrgeschwindigkeit ist (Gl. 2.12).

$$\dot{V} = -\frac{k A (p_b - p_a)}{\mu L} = \frac{k A \Delta p}{\mu L} \quad (2.11)$$

$$\frac{\Delta p}{L} = \frac{\mu}{k} U_0 \quad (2.12)$$

Mit k wird in Gl. 2.11 und 2.12 die Permeabilität [m^2] bezeichnet.

Die Abbildung 2.14 dient zur schematischen Darstellung des Darcy-Gesetzes. Die Rohrrohrgeschwindigkeit U_0 (Gl. 2.12) ist der querschnittsflächenbezogene Volumenstrom. Der Proportionalitätsfaktor in Gl. 2.12 ist ein Verhältnis zwischen dynamischer Viskosität des Fluids und Permeabilität der porösen Struktur. Dieses Gesetz gilt für langsame viskose Strömungen. Jedoch sind die mikroskopischen Trägheitseffekte in der Strömung durch ein inertes poröses Medium im Falle größerer Reynoldszahlen nicht mehr zu vernachlässigen. Daher wurde die Darcy-Gleichung von Forchheimer im Jahr 1901 um einen weiteren empirischen Term ergänzt, um die mikroskopischen Trägheitseffekte zu berücksichtigen [48]. Diese Erweiterung der Darcy-Gleichung ist bekannt als Forchheimer-Gleichung und ist in Gl. 2.13 gegeben.

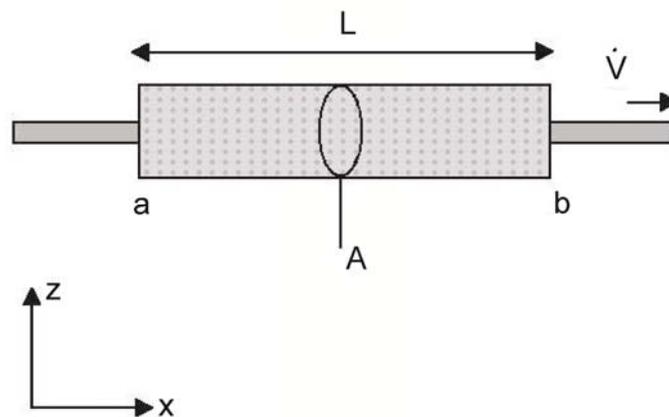


Abbildung 2.14: Schematische Darstellung zum Darcy-Gesetz

$$\frac{\Delta p}{L} = \frac{\mu}{k_1} U_0 + \frac{\rho}{k_2} U_0^2 \quad (2.13)$$

Dabei bezeichnet $\Delta p/L$ den längenbezogenen Druckverlust, μ die dynamische Viskosität, ρ die Fluidichte und U_0 die Leerrohrgeschwindigkeit; k_1 und k_2 sind die

Darcy'sche und eine zusätzliche Permeabilität, die nicht in der Beschreibung nach Darcy enthalten ist („*non-Darcy*“). Beide sind von der porösen Struktur abhängig.

Auf der gleichen Grundlage und unter Anwendung sowohl auf sphärische als auch auf asphärische Partikelschüttungen wurde von Ergun [49] die folgende Beziehung vorgeschlagen:

$$\frac{\Delta p}{L} = 150 \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^2} \frac{\mu}{d_p^2} U_0 + 1,75 \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} \frac{\rho}{d_p} U_0^2 \quad (2.14)$$

Die direkte Anwendung dieser Gleichungen auf den Druckverlust bei der Durchströmung von offenporigen keramischen Schwammstrukturen führt aber zu erheblichen Abweichungen (ca. 50% [21]) von experimentell ermittelten Daten. Das Hauptproblem stellt dabei der Ersatz des Partikeldurchmessers d_p in Gl. 2.14 durch ein äquivalentes Längenmaß auf der Basis von Strukturparametern dar [21].

Richardson et al. [10] untersuchten dazu verschiedene vereinfachte Modelle für komplexe poröse Strukturen offenporiger keramischer Schwämme und die aus den Modellen resultierenden Längenmaße (z. B. den hydraulischen Durchmesser eines Zylinders oder den Porendurchmesser der verschiedenen Modellstrukturen) und verglichen diese Rechenergebnisse mit eigenen Messdaten. Als Ergebnis empfehlen die Autoren den einfachen hydraulischen Durchmesser, da sich die Ergebnisse der verschiedenen Modelle nur wenig unterscheiden. Sie schlagen die folgende empirische Beziehung vor:

$$\frac{\Delta p}{L} = \frac{973 d_{pore}^{0,743} S_v^2 \mu (1-\varepsilon)^2}{(1-\varepsilon)^{0,0982} \varepsilon^3} U_0 + \frac{368 S_v \rho (1-\varepsilon)^{0,07158} (1-\varepsilon)}{d_{pore}^{0,7523} \varepsilon^3} U_0^2 \quad (2.15)$$

Moreira und Coury [50] dagegen schlagen für den Druckverlust eine Funktion basierend auf ihren Messdaten in keramischen Schwämmen vor, wobei deren Abweichung kleiner als 8% für alle von ihnen untersuchten Proben war:

$$\frac{\Delta p}{L} = 1,275 \cdot 10^9 \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} \frac{\mu}{d_{pore}^{-0,05}} U_0 + 1,89 \cdot 10^4 \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3} \frac{\rho}{d_{pore}^{-0,25}} U_0^2 \quad (2.16)$$

Ein systematischer Vergleich der oben aufgeführten Korrelationen mit eigenen Messdaten wurde von Reitzmann et al. [8] durchgeführt. Sie stellten fest, dass die Ergebnisse der Korrelationen merklich von den Messdaten abweichen. Lopes et al. führten eine experimentelle Druckverlustcharakterisierung der mittels Platzhaltertechnik selbst gefertigten keramischen Schwämme durch und zeigten, dass die ermittelten Werte sehr gut mit dem Darcy-Gesetz übereinstimmten [19]. Dabei ist zu betonen, dass der untersuchte Geschwindigkeitsbereich in diesem Fall sehr geringe Geschwindigkeiten von 0,006 bis 0,033 m/s beinhaltete. Im Gegensatz dazu

untersuchten Philipse und Schram [20] die („*non-Darcy*“) Strömung durch keramische Schwämme außerhalb des Darcy'schen Regimes. Die dabei erhaltenen experimentellen Ergebnisse wiesen eine gute Übereinstimmung mit der Forchheimer-Gleichung (Gl. 2.13) auf. Die Untersuchungen wurden für beide, Wasser- und Gasströmung, durchgeführt, und es wurde bewiesen, dass die aus den Messdaten gewonnene Darcy'sche Permeabilität nicht vom penetrierten Medium abhängt, wie schon von Darcy [47] postuliert wurde. Darüber hinaus, zeigte sich, dass die zwei verschiedenen, aus dem gleichen Schwamm geschnittenen Proben, nicht die gleiche Permeabilitäten besitzen. Dies lässt sich durch die lokalen Variationen in der Porenstruktur klären und ist noch ein Beweis, warum die empirisch korrigierten Ergun-Gleichungen so starke Abweichungen von den anderen, nicht für die Gleichungskorrektur analysierten Schwämmen aufweisen. Die Autoren behaupten, dass das Verhältnis k_1/k_2 im Groben proportional zur mittleren Porengröße ist und dass es zur Definition einer Re-Zahl, die den Übergang zwischen dem Darcy'schen und dem „*non-Darcy*“ Regime für das gewisse Fluid bestimmt, dienen kann.

Im Gegensatz zur Beschreibung durch empirische Korrelationen kann der Druckverlust mit Hilfe der numerischen Strömungssimulation direkt aus den Rechenergebnissen entnommen werden. In [23] wurden einerseits aus MRI-Messdaten („Magnetic resonance imaging“) gewonnene, rekonstruierte Geometriedaten sowie auch eine Modellgeometrie mit annähernd gleicher spezifischer Oberfläche und Porosität mit einem Rechenetz diskretisiert, und darauf aufbauend wurde die Strömung mit einem kommerziellen CFD Programm simuliert. Als Basis für die Modellstruktur diente die Kelvin-Struktur. Obwohl diese Struktur aus den physikalisch motivierten Betrachtungen zur Minimierung der Oberflächenenergie entstanden ist, entspricht sie schon rein visuell nicht der Struktur realer offenporiger Schwämme (s. Abb. 2.15). Als offenkundigster Unterschied sind in realen Schwammstrukturen, im Gegensatz zu dem oben genannten Modell, unregelmäßige Porenformen und -größen zu finden (Abb. 2.1). Zusätzlich weisen die regelmäßigen Modellstrukturen, im Gegensatz zu realen Strukturen, Vorzugsrichtungen auf, in denen die durchgehend versperrte Fläche vergleichsweise klein ist. Aus diesem Grund ist bei regelmäßigen Strukturen in bestimmten Richtungen auch ein kleiner Strömungswiderstand zu erwarten. Um einerseits die topologisch gute Entsprechung realer Schwammstrukturen mit der Kelvin-Struktur zu erhalten und gleichzeitig den Vorteil fehlender Vorzugsrichtungen bei randomen Strukturen zu nutzen, wurde in [23] für die Generierung der Modellstruktur ein hybrider Ansatz verwendet. Dabei wurde zunächst eine regelmäßige Struktur erzeugt und dann wurden – in einem zweiten Arbeitsschritt – die Knotenpunkte der Struktur durch einen mittelwertfreien Zufallsprozess verschoben. Bei den auf diese Weise randomisierten Kelvin-Strukturen wurden die Steglängen und Winkel zwischen den Stegen im Mittel näherungsweise erhalten, wobei gleichzeitig die globale Anisotropie der geordneten Struktur verringert wurde (Abb. 2.15). Um den Vergleich der Rechenergebnisse zu

ermöglichen, wurden in [23] alle generierten Strukturen so angepasst, dass sie die gleiche spezifische Oberfläche und Porosität wie die rekonstruierte Struktur besitzen.

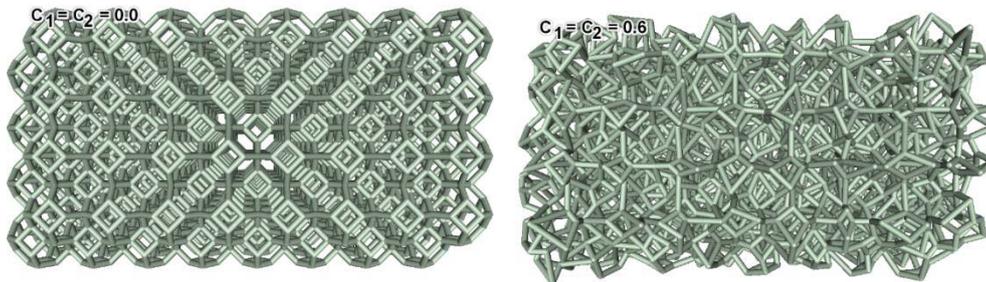


Abbildung 2.15: Kelvin-Strukturen (8 x 4 x 4 Zellen, runde Verbindungsstege). Links: geordnete Struktur, rechts: randomisierte Struktur [23]

Abbildung 2.16 zeigt das Ergebnis der in [23] durchgeführten numerischen Strömungssimulationen. Der gewonnene normierte Druckverlust ist in Abhängigkeit von der Leerrohrgeschwindigkeit U_0 für die Strömungssimulation in der rekonstruierten Geometrie (MRI) und für Simulationen in der randomen Modellstruktur im Vergleich mit Messdaten nach [10] dargestellt. Als Bezugswert wurde $p_{\text{ref}} = 1$ bar verwendet.

Dabei zeigte sich, dass die berechneten Druckverlustdaten auf Basis der rekonstruierten Schwammgeometrie mit den Messdaten sehr gut übereinstimmen. Im Gegensatz dazu ist der Druckverlust bei Durchströmung der Modellgeometrien um ca. den Faktor 0.5 zu klein und trotz verschieden starker Randomisierung der Struktur nahezu identisch. Auf der Basis dieser Ergebnisse haben die Autoren festgestellt, dass die Richtungsabhängigkeit der Struktur für den Druckverlust zumindest nur eine untergeordnete Rolle spielt. Weiterhin wurde geschlossen, dass die zwei verwendeten Strukturmerkmale, Porosität und spezifische Oberfläche, nicht ausreichend sind, um an das Druckverlustproblem heranzugehen. Als ein weiterer Einflussparameter wurde die Strömungstortuosität betrachtet. Der Unterschied zwischen den Rechenergebnissen wurde durch die Unterschiede in dieser Strömungsgröße bei verschiedenen Strukturen erklärt.

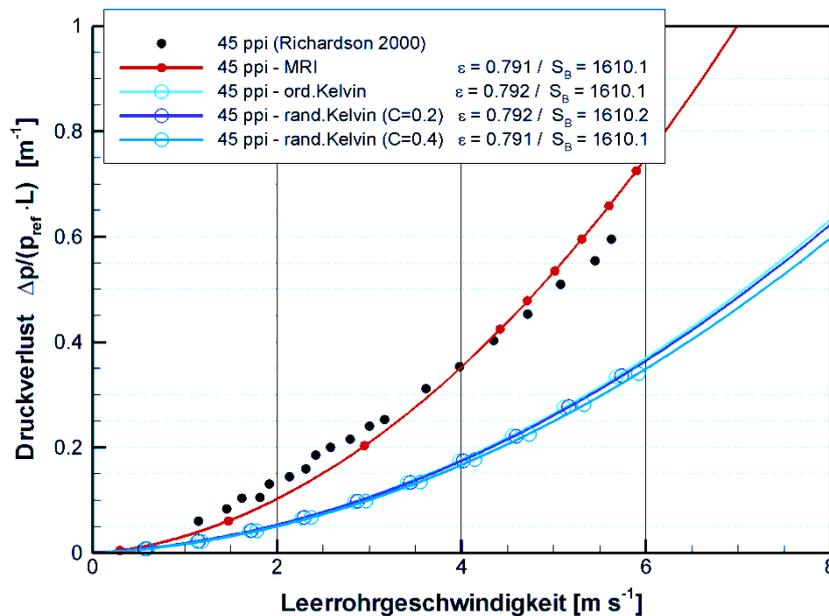


Abbildung 16: Vergleich von Druckverlustdaten aus Strömungs-simulationen (Symbole mit Linien) und gemessenen Druckverlustdaten nach [10] (rote Symbole) als Funktion der Leerrohrgeschwindigkeit. [23]

2.1.2.2 Strömungstortuosität

Die Transportphänomene in festen Schwämmen sind durch geometrische, üblicherweise in globalen Termen gegebene Parameter wie Porosität, Porengrößenverteilung, statistisch gemittelte Porenkonnektivität und mittlere Tortuosität bestimmt. Die Tortuosität τ_g der Strömung durch ein poröses Medium beschreibt die relative Weglänge, die ein Fluidelement bei der Durchströmung zurücklegt. In Abb. 2.17 ist dieser Sachverhalt skizziert. Bei gleichem Volumenstrom und gleicher Porosität beider Strukturen ist die Verweilzeit in beiden Fällen gleich. Während jedoch die Strömung durch die linke Struktur einen wesentlich größeren Weg zurücklegen muss ($\tau_g > 1$) und damit eine größere innere Geschwindigkeit aufweist, ist die Weglänge durch die rechte Struktur nicht beeinflusst ($\tau_g = 1$). Nach [51] wird die Tortuosität direkt als Verhältnis der Weglänge L_{eff} , die das Fluid durch die poröse Struktur zurücklegt, zur Dicke L der porösen Struktur definiert: $\tau_g = L_{eff} / L$. Im Gegensatz zu dieser Definition wird in der Literatur auch häufig der Kehrwert dieses Verhältnisses verwendet (z.B. [27]). Darüber hinaus neigt die Tortuosität der gering porösen Körper zu höheren Werten und umgekehrt. Die porösen Medien mit höherer Konnektivität weisen eine geringere Tortuosität auf und umgekehrt [52]. Zur Bestimmung der Tortuosität wurde in [51] die Messung des

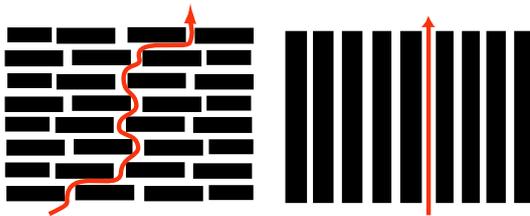


Abbildung 2.17: Poröse Strukturen unterschiedlicher Tortuosität der Strömung

elektrischen Widerstandes einer vollständig mit leitfähiger Lösung gefüllten Struktur vorgeschlagen. Moreira und Coury [50] bestimmten mit dieser Methode eine Tortuosität von $\tau_g=1.5-1.8$ für eine 45 PPI Schwammstruktur aus Al_2O_3/SiC .

Mit dem Ziel der Modellierung von 3D-Strömung in porösen Media wurde von [27] eine Darstellung der porösen Struktur durch RUC (Representative Unit Cell) in Form von drei kurzen viereckigen, senkrecht zueinander positionierten Kanälen (Abb. 2.10) vorgeschlagen. Dies erlaubte die Herstellung einer direkten Beziehung zwischen der Porosität und Strömungstortuosität mit dem Ergebnis, dass die poröse Struktur nur mit zwei Parametern beschrieben werden kann: Porosität und mikroskopische charakteristische Länge.

Die komplexe interne Architektur der festen Schwämme erfordert oft die Vereinfachung der Modellierungsmethode für Transportprozesse durch die Betrachtung von Porenkörpern als ein pseudo-homogenes Material. Jedoch ist es vorhersehbar, dass die Transportphänomene in festen Schwämmen mit den lokalen Heterogenitäten sowohl aufgrund der räumlichen Porengrößenverteilung als auch aufgrund der Leerraumkonvektivität, zusammenhängen. Die Anwendung der so genannten „Lokale Tortuosität Methode“ (Verwendung von Porentortuositätsverteilung) ermöglicht es, den Effekt der topologischen Eigenschaften auf die Transportprozesse zu berücksichtigen [52].

Habisreuther et al. [53] schlugen eine einfache Bewertung der Strömungstortuosität vor, basiert auf dem Verfolgen von Partikeltrajektorien in der untersuchten Struktur. Die Integration der Partikeltrajektorie resultiert direkt in der Strömungsweglänge L_{eff} . Laut der Definition der Tortuosität ($\tau_g = L_{eff}/L$) ist es dann möglich, (mit bekannter Strömungsdomainlänge L) diesen Parameter für jede Partikel zu bestimmen (Abb. 2.18). Die Tortuosität zweier mit gleicher Porosität und gleicher spezifischen Oberfläche charakterisierten Strukturen, eine aus MRI Daten rekonstruierte reale Schwammstruktur und eine randomisierte Kelvin-Struktur, wurde in [53] bestimmt. Darüber hinaus wurde es gezeigt, dass die Strömungstortuosität und Tortuositätsverteilungsbreite durch Verschließen von Fenstern in der Modellstruktur mit Erhaltung der gleichen Porosität und spezifischen Oberfläche variiert werden können. Es wurde abgeleitet, dass für die Modellierung der Strömungsvorgänge in festen Schwämmen die zwei globalen Parameter Porosität und spezifische Oberfläche nicht ausreichend sind, sondern es müssen die lokalen Heterogenitäten durch die Tortuositätsverteilung mit einbezogen werden.

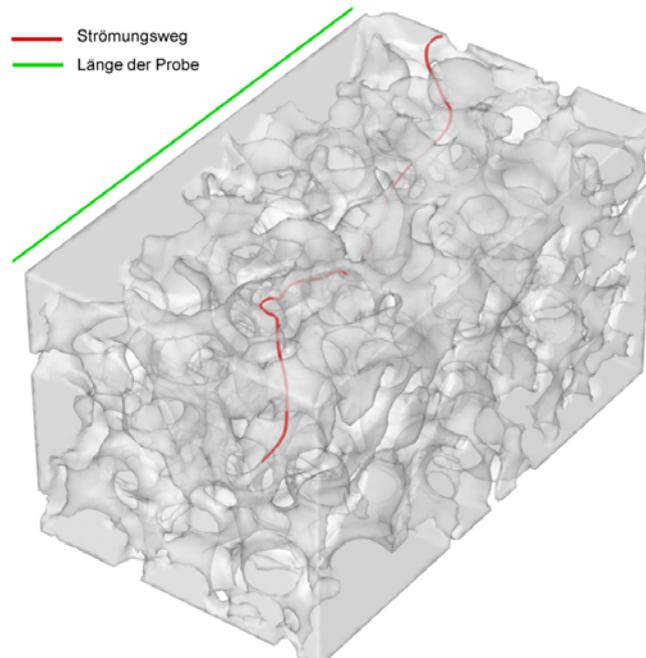


Abbildung 2.18: Numerische Bestimmung der Tortuosität: Partikeltrajektorie und Probenlänge [53]

2.1.2.3 Strömungsregime in festen Schwämmen

Für die genaue Beschreibung der mit der Strömung durch poröse Medien gekoppelten Prozesse sind gute Kenntnisse der Strömungsdynamik erforderlich. Mit dem Ziel, ein Kriterium in Form einer Reynolds-Zahl festzulegen, bei welcher eine laminare Strömung durch ein poröses Medium nicht mehr aufrechterhalten werden kann, wurden viele Versuche meistens mit den Kugelschüttungen durchgeführt [54, 55, 56, 57, 58, 59]. Es wurde üblicherweise eine so genannte Partikel-Re-Zahl, basiert auf dem Partikeldurchmesser, wie folgt definiert:

$$\text{Re}_{part} = \frac{U_0 d_{part} \rho}{\mu} \quad (2.17)$$

Die Untersuchungen zeigten, dass eine Partikel-Re-Zahl existiert, welche das Ende des laminaren Bereichs in einer Partikelschüttung bestimmt, und diese Zahl nimmt die Werte zwischen $\text{Re}_{part} \approx 90 - 180$ an [54, 55, 56, 57, 58].

Im Gegensatz zu den zahlreichen Studien über die Strömung in Partikelschüttungen sind die Untersuchungen der Strömungsregime in festen Schwämmen eher selten [58, 59, 60]. Hall und Hiatt [60] führten die LDA (Laser-Doppler-Anemomentrie)-Messungen der mittleren Geschwindigkeit und Turbulenzintensität auf der Porenebene sowohl am Austritt der verschiedenen festen Schwämme als auch in der 5 mm hohen Sektion zwischen zwei Schwammproben

durch. Die gemessenen Geschwindigkeiten in der Strömungsrichtung und in der Richtung quer zur Strömung wiesen negative Werte auf an den Stellen, wo sich höchstwahrscheinlich Stege befanden. Die ermittelten Turbulenzintensitäten waren höher für die großporigen Schwämme und nahmen mit der Verkleinerung der Porenabmessungen ab. Jedoch entspricht die Strömung oberhalb der porösen Struktur nicht der Strömung innerhalb dieser Strukturen.

Seguin et al. [58, 59] benutzten die Messtechnik basierend auf elektrochemischen Mikrofühlern, um die Regime der Strömung durch poröse Medien zu charakterisieren. Die hierbei gemessene Stromintensität ist eine Funktion der lokalen Schubspannungen in der Strömung. Deshalb ist ein schwankender Strom ein Beweis für die Fluktuation der Strömung in der Nähe der Kathode des elektrochemischen Fühlers. Ihre Ergebnisse zeigten einen deutlichen Laminarisierungseffekt der Schwammstrukturen. D.h. auch bei Re-Zahlen, bei welchen die Leerrohrströmung schon turbulent wäre, war die Strömung innerhalb des festen Schwammes noch laminar. Dieser Laminarisierungseffekt steigt mit sinkender Porengröße, was in Übereinstimmung mit dem Befund von Hall und Hiatt [60] steht. Die Stromschwankung wurde bei großporigen Schwämmen bei einer sehr hohen Re-Zahl erfasst, wobei für die feinporigen Schwämme auch bei den höchsten untersuchten Volumenströmen keine Fluktuation ermittelt werden konnte.

2.1.2.4 Hydrodynamische Dispersion

Die hydrodynamische Dispersion entspricht einem durch das komplexe hauptsächlich dreidimensionale Strömungsfeld getriebenen erhöhten Mischen, das in Strömungen durch poröse Medien vorhanden ist. Eine Strömung treibt die Dispersion kinematisch durch die Aufteilung und Vereinigung der Stromlinien, die zwischen Aufteilungs- und Vereinigungsereignis entlang unterschiedlicher tortuöser Pfade strömen; und dynamisch durch Unterschiede in den Partikelgeschwindigkeiten entlang der Stromlinien als Folge des variierenden Strömungswiderstandes entlang der von Stromlinien durchlaufenen Strecken [61]. Darüber hinaus erfolgt das Mischen aufgrund der molekularen Diffusion, die den Molekülaustausch zwischen Stromlinien ermöglicht. Dieses Phänomen wurde mehrere Jahrzehnte untersucht, meist für die Anwendung bei den unterirdischen Strömungen von Wasser oder Öl durch poröse Steine. In letzter Zeit entstand das Interesse für chemisch reagierende Strömungen durch poröse Medien, da durch die erhöhte Mischungsintensität eine Erhöhung der mittleren Umsatzrate ermöglicht wird. Die meisten Studien behandeln hydrodynamische Dispersion in Kugelschüttungen aufgrund ihrer physikalisch einfach beschreibbaren Struktur.

In einer Strömung durch ein poröses inertes Medium besteht eine breite Palette verschiedener Mischensmechanismen, die auf verschiedenen Maßstabebenen wirken, von auf der Porenebene wirkender molekularer Diffusion bis zu den Permeabilitätsheterogenitäten, die bei großen Volumina festgestellt werden können [61]. Um

die Dispersion beschreiben zu können, ist es wichtig, die Transportvorgänge auf der Porenebene mit deren Auswirkungen auf die Makroebene in Beziehung zu bringen. Für die Porenebene wird der Stofftransport durch die Konvektion und Diffusion wie folgt definiert:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u \nabla c = D_m \nabla^2 c \quad (2.18)$$

wobei c und u die Konzentration des aufgelösten Stoffes bzw. die massengemittelte Geschwindigkeit ($u = \sum_{i=1}^n (\rho_i u_i) / \sum_{i=1}^n \rho_i$) in bestimmter Position und Zeit t bezeichnen; D_m kennzeichnet den molekularen Diffusionskoeffizienten.

Für die Beschreibung des Stofftransports durch Dispersion werden derzeit in der Praxis meist pseudohomogene Modelle verwendet [62]. Dies bedeutet, dass in Analogie zum molekularen oder turbulenten Stofftransport, die Dispersion als Gradient einer gemittelten Konzentration definiert wird, wobei anstelle der molekularen Transportkoeffizienten die Dispersionskoeffizienten treten. D.h., auf der Makroebene wird die Dispersion des aufgelösten Stoffes durch die konvektive Dispersionsgleichung wie folgt gegeben:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \cdot \nabla C = \nabla (\mathbf{D} \nabla C) \quad (2.19)$$

In diesem Fall ist C eine Konzentration auf der Makroebene, die eine gemittelte Konzentration in der Porenebene darstellt. Diese Konzentration ist, genau wie die lokale Konzentration in der Porenebene, eine kontinuierliche Funktion der Position. Der molekulare Diffusionskoeffizient wird hier durch einen Dispersionstensor \mathbf{D} ersetzt. Auch wenn das poröse Medium isotrop ist, ist es nötig, aufgrund der Vorzugsrichtungsauswirkung der Strömung auf die Gleichung 2.19, den Dispersionskoeffizient als Tensor darzustellen. Für eine Strömung in x-Richtung durch ein isotropes poröses Medium ist der Dispersionstensor wie folgt definiert:

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} D_{Ax} & 0 & 0 \\ 0 & D_R & 0 \\ 0 & 0 & D_R \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

D_{Ax} bezeichnet den axialen Dispersionskoeffizienten, der zu einer Ausbreitung des Pulsereignisses entlang der Strömungsrichtung beiträgt. D_R kennzeichnet den radialen Dispersionskoeffizienten, der zur Ausbreitung des aufgelösten Stoffes senkrecht zur Strömungsrichtung beiträgt. Um den Dispersionsprozess theoretisch beschreiben zu können, bleibt nun die Frage nach dem Zusammenhang zwischen den Dispersionskoeffizienten D_{Ax} und D_R , und der Strukturtopologie.

Die historische Entwicklung der Dispersionstheorie begann mit den Studien an der Dispersion eines aufgelösten Stoffes in Kapillaren [63, 64, 65]. Die Prinzipien dieser Theorie wurden von Bear im Jahr 1972 [66] an poröse Medien, z. B. Schüttungen, angewandt. Weiter wurde das Phänomen der Dispersion von vielen Autoren meistens in Kugelschüttungen untersucht, um die relevanten theoretischen Vorhersagen zu erstellen.

Die relative Wichtigkeit der molekularen Diffusion und hydrodynamischen Dispersion ist üblicherweise durch eine Peclet-Zahl ausgedrückt:

$$Pe = \frac{u \cdot d}{D_m} \quad (2.21)$$

wo u die mittlere Porengeschwindigkeit, d die charakteristische Länge des Porenkörpers und D_m den molekularen Diffusionskoeffizienten kennzeichnet. Je größer die Pe-Zahl ist, desto höher ist der Beitrag der hydrodynamischen Dispersion zu dem totalen Stofftransport. Carbonell und Whitaker [67] leiteten aus der Konvektions-Diffusions-Gleichung (Gl.2.19) durch Volumenmittelung in porösem Medium die folgende Gleichung her:

$$\varepsilon \frac{\partial C}{\partial t} + \nabla(U_0 \cdot C) = \nabla(\varepsilon \cdot \mathbf{D} \nabla C) \quad (2.22)$$

wobei $U_0 = u \cdot \varepsilon$ der Leerrohrgeschwindigkeit entspricht.

Hydrodynamische Dispersion der porösen Medien wird üblicherweise in durchströmten Kolonnen untersucht, wobei am Einlass ein Tracer eingedüst und seine Konzentration am Auslass aufgenommen wird. Die Tracereindüstung kann als Sprung- oder Pulsfunktion erfolgen. Der axiale Dispersionskoeffizient wird dann durch die Anpassung des am Auslass ermittelten zeitlichen Konzentrationsverlaufs an die eindimensionale Form der Gleichung 2.22, bestimmt. Obwohl die Dispersionskoeffizienten typisch als asymptotische Konstante gegeben sind, ist es auch möglich, diese als zeitabhängige Größen anzusehen [68]:

$$D_{Ax}(t) = \frac{1}{2} \frac{d\sigma^2}{dt} = \int_0^t C_{Ax}(t') dt' \quad (2.23)$$

Hierbei ist σ die Standardabweichung von räumlichen Konzentrationsverteilungen entlang der Achse. Die zur Ermittlung von asymptotischen Dispersionskoeffizienten benötigte Zeit ist eine systemabhängige Größe. Für sehr geringe Volumenströme ist die Dauer der Experimente ausreichend lang, um den asymptotischen Wert des Dispersionskoeffizienten zu erreichen. Im Gegensatz dazu dauern die Experimente bei sehr hohen Volumenströmen kurze Zeit, so dass der Dispersionskoeffizient eine Funktion der axialen Position in der Kolonne

ist. In diesem Zusammenhang führten Han et al. [69] eine ausführliche Untersuchung der axialen und radialen Dispersion in Kugelschüttungen durch. In dieser Arbeit wurde der axiale Dispersionskoeffizient in Abhängigkeit von der Pe-Zahl gemessen. Als Tracer wurde NaCl-Lösung in entionisiertem Wasser verwendet, und seine Konzentrationsverteilung wurde mittels Pt-Leitfähigkeitsfühlers ermittelt. Zwei Methoden wurden untersucht: Eindüsung von Tracer als Pulsfunktion und Eindüsung von Tracer als Sprungfunktion, wobei die letztere in einer geringeren Streuung der Messergebnisse resultierte. Die Autoren leiteten aus eigenen Messergebnissen ein empirisches Kriterium her, das erfüllt werden muss, um den Dispersionskoeffizienten als eine von der Position in der Kolonne unabhängige Größe zu ermitteln. Dieses Kriterium ist mit der folgenden Gleichung gegeben:

$$\left(\frac{L}{d_p}\right) \frac{1}{Pe_p} \left(\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon}\right) \geq 0,3 \quad (2.24)$$

Die gemessenen radialen Dispersionskoeffizienten sind in Abb. 2.19 gezeigt. Es wurde keine Abhängigkeit dieser Koeffizienten von der Position in der Schüttung festgestellt. Darüber hinaus wurde in [69] ein wichtiger Beitrag bezüglich des Einflusses der Porengrößenverteilung der Kugelschüttung auf den axialen und radialen Dispersionskoeffizienten geleistet. Drei unterschiedliche Schüttungen, charakterisiert mit einem gleichen mittleren Partikeldurchmesser und mit gleicher Porosität, wurden untersucht. Es wurde bewiesen, dass die axiale Dispersion sehr empfindlich auf die Änderung der Porengrößenverteilung reagiert. Die breitere Porengrößenverteilung resultierte in einem 2-3 Mal höheren axialen Dispersionskoeffizienten.

Eine weiterentwickelte Dispersionstheorie wurde von Koch und Brady [70] analytisch anhand asymptotischer Analyse für randome Kugelschüttungen und den Gesamtbereich der Pe-Zahlen eingeführt. Ihre Ergebnisse für die axiale und radiale Dispersivität sind im Fall der für den Tracer undurchlässigen Feststoffphase und für einen breiten Bereich von Pe-Zahlen ($Pe'_m > 1$) mit den Gleichungen 2.25 und 2.26 gegeben.

$$\frac{D_{Ax}}{D'_m} = 1 + \frac{3}{4} \frac{Pe'_m}{2} + \frac{\pi^2}{6} (1-\varepsilon) \frac{Pe'_m}{2} \ln\left(\frac{Pe'_m}{2}\right) \quad (2.25)$$

$$\frac{D_R}{D'_m} = 1 + \frac{63\sqrt{2}}{320} \sqrt{1-\varepsilon} \left(\frac{Pe'_m}{2}\right) \quad (2.26)$$

Hierbei ist $D'_m = D_m / \tau$ ein effektiver Diffusionskoeffizient, der zusätzlich die Strömungstortuosität τ berücksichtigt. Pe'_m bezeichnet die mit D'_m definierte Pe-Zahl. Dieses Dispersionsmodell zeigt, dass sich die so genannte axiale Dispersivität (D_{Ax} / D'_m) proportional zu dem Term $Pe'_m \ln(Pe'_m)$ verhält und die radiale Dis-

persivität (D_R/D'_m) direkt proportional zur Peclet-Zahl, Pe'_m ist. Dies ist in Übereinstimmung mit der Arbeit von Saffman [71] wo die Dispersion in randomen porösen Media mit random orientierten Kapillaren modelliert wurde.

Wie schon diskutiert, besteht der Fluiddispersionskoeffizient aus einem Beitrag der molekularen Diffusion und aus einem hydraulischen, oft in der Literatur als turbulent bezeichneten Beitrag. Dieser „turbulente“ Beitrag wurde in [72] für Kugelschüttungen in Form der Pe-Zahl gegeben:

$$(Pe_R)_{Mix} = \frac{d_p \cdot U_0}{(D_R)_{Mix}} \cong 10 \quad (2.27)$$

$$(Pe_{Ax})_{Mix} = \frac{d_p \cdot U_0}{(D_{Ax})_{Mix}} \cong 2 \quad (2.28)$$

Hydrodynamische Dispersion in porösen Medien wurde in der Literatur ausführlich modelliert und experimentell untersucht [40, 61, 66-88]. Da sich zahlreiche Studien mit der Dispersion in Kugelschüttungen beschäftigen, werden im Weiteren nur die ausgewählten Arbeiten, die die Strömungsdispersion in festen Schwämmen behandeln, dargestellt.

Benz et al. [79] haben die radialen Stoffdispersionskoeffizienten der Schwammstrukturen aus Cordierit verschiedener Porendichte (10, 20, 30, 50 PPI) nach der Injektionsmethode bestimmt und die ermittelten Ergebnisse wurden in Abb. 2.19 gezeigt. Hierbei wurde der Tracer punktförmig und kontinuierlich am Eintritt des mit der Luft durchströmten Schwammes zugegeben, und am Austritt wurde die radiale Konzentrationsverteilung des Tracers gemessen. Als Tracer wurde Methan verwendet. Für Leerrohrgeschwindigkeiten U_0 von 0,6–6 m/s wurde mit einem mittleren Porendurchmesser d_{pore} folgende Beziehung erhalten:

$$Pe = \frac{d_{pore} \cdot U_0}{D_R} = 8 \quad (\pm 30\%) \quad (2.29)$$

Das gleiche Messverfahren wurde in [80] verwendet, wobei als Tracer ein Räucherstäbchen diente. Es wurden keramische Schwämme aus PSZ (Partially Stabilized Zirconia) mit verschiedenen PPI-Zahlen (10, 20, 30, 45 PPI) untersucht. Der Mischungsfortschritt wurde am Schwammaustritt gemessen, indem die Rauchpartikel mit einem Laserschnitt beleuchtet wurden und das Streulicht mittels einer senkrecht angeordneten Kamera aufgenommen wurde. Die experimentellen Ergebnisse zeigten eine gute Übereinstimmung (unter Berücksichtigung der Dissipation von Literaturdaten) mit sowohl mit der Koch-und-Brady-Theorie (Gl. 2.26) als auch mit anderen experimentellen Literaturdaten. Die hierbei gewonnenen radialen Stoffdispersionskoeffizienten sind zusammen mit anderen Literaturdaten

und dem Koch-und-Brady-Modell in Abb. 2.19 aufgezeigt. Obwohl die in Abb. 2.19 dargestellten Werte für radiale Dispersionskoeffizienten in festen Schwämmen bzw. Kugelschüttungen eine gleiche Tendenz aufweisen, ist nicht vernachlässigbar, dass in dieser Darstellung die Daten logarithmisch aufgetragen sind die absoluten Beträge der Abweichungen erheblich sind.

Das analoge Experiment wurde in [84] auf A_2O_3 Schwämmen (10, 20, 60 PPI) durchgeführt. Wieder zeigten die Messergebnisse eine befriedigende Übereinstimmung mit den aus dem Koch-und-Brady-Modell ermittelten Dispersionskoeffizienten und mit den Messergebnissen von [80].

Im Rahmen dieser Literaturrecherche wurden keine Arbeiten gefunden, die sich mit der experimentellen Ermittlung von axialen Dispersionskoeffizienten in festen Schwämmen beschäftigen. Jedoch wurden einzelne Versuche gefunden, den axialen Dispersionskoeffizient in festen Schwämmen aus den numerischen Simulationen zu bestimmen. In [62] wurden die axialen Dispersionskoeffizienten in Abhängigkeit von Pe-Zahl mittels Lattice-Boltzmann-Verfahren ermittelt. Als Basis zur Generierung des Rechengitters diente die mittels Röntgen-Computer-Tomographie gescannte SiC-Schwammstruktur. Habisreuther et al. [89] führten eine numerische Bestimmung der axialen Dispersionskoeffizienten diverser keramischer Schwammstrukturen. Die hierbei verwendete Vorgehensweise und die einzelne daraus resultierende Ergebnisse werden in Kapitel 4.2.1.2 näher erörtert.

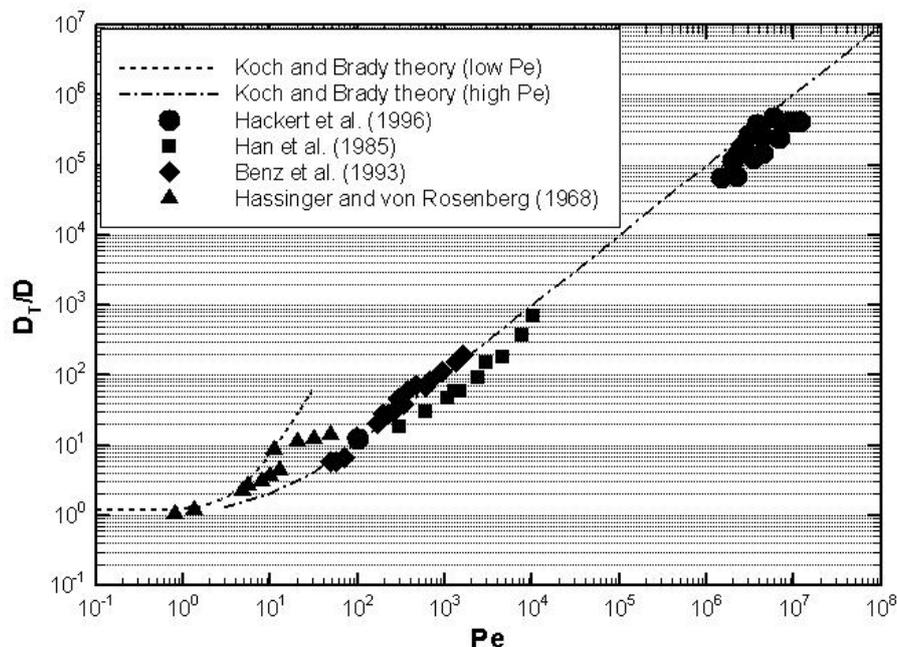


Abbildung 2.19: Radiale Stoffdispersionskoeffizienten der festen Schwämme (79, 80) und der Schüttungen [69, 73] Experimentelle und theoretische Ergebnisse [70]

2.1.3 Wärmetransporteigenschaften

Viele Vorteile der Verbrennung in porösen Medien beruhen auf dem im Vergleich zur Verbrennung in konventionellen Gasflammen erhöhten Wärmetransport in der Reaktionszone. Deshalb spielen die Wärmetransporteigenschaften der porösen Körper eine entscheidende Rolle für die Flammenstabilisierung (siehe Kapitel 2.3). Darüber hinaus sind diese Eigenschaften für alle potentiellen verfahrenstechnischen Anwendungen von großer Bedeutung. Wärmetransporteigenschaften fester Schwämme werden auf einer Seite durch die Strukturgeometrie und auf der anderen Seite durch das Material, aus welchem der Schwamm hergestellt wurde, bestimmt. In diesem Abschnitt wird eine Übersicht über die in der Literatur verfügbaren Daten und Modelle bezüglich der einzelnen Wärmetransporteigenschaften gegeben.

2.1.3.1 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitung in festen Schwämmen ist gleichbedeutend mit dem Wärmetransport durch die Stege. Die Wärmeleitfähigkeit dieser porösen Strukturen unterscheidet sich wesentlich von der Wärmeleitfähigkeit des Feststoffs, da in diesem Fall Wärme nicht entlang des kürzesten Weges geleitet werden kann sondern entlang der tortuösen Wege, die aus der Schwammstruktur resultieren. Deshalb ist die Wärmeleitfähigkeit eines Schwammes in der Regel vielfach geringer als die Wärmeleitfähigkeit des entsprechenden nicht porösen Festkörpers. Die experimentelle Ermittlung dieser Größe ist verbunden mit der Schwierigkeit, den Wärmeleitungseffekt von dem Strahlungseffekt und dem Effekt der freien Konvektion zu trennen. Aus diesem Grund wird in der Literatur oft die Vorgehensweise für die Bestimmung von Wärmetransportkoeffizienten der undurchströmten Feststoffphase dargestellt, die alle diese Effekte berücksichtigt und in Form einer so genannten Ruhewärmeleitfähigkeit resultiert. Ein Beispiel der experimentell ermittelten Ruhewärmeleitfähigkeiten verschiedener poröser Körper in Abhängigkeit der Temperatur ist in Abb. 2.20 gegeben [13]. Es wird deutlich, dass die Ruhewärmeleitfähigkeit der untersuchten porösen Medien mit der Temperatur steigt, was hauptsächlich auf den Strahlungsanteil zurückzuführen ist. Darüber hinaus steigt die Ruhewärmeleitfähigkeit mit der PPI-Zahl.

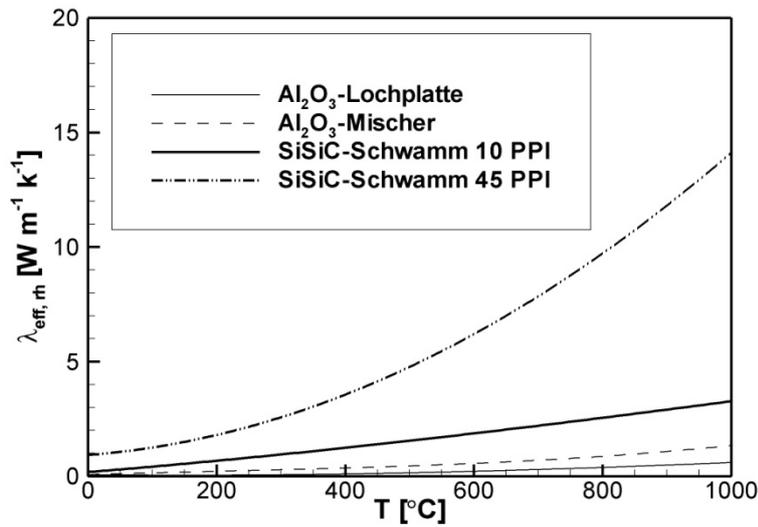


Abbildung 2.20: Ruhewärmeleitfähigkeit von porösen Medien als Funktion der Temperatur [13]

Weiterhin wurde für die Charakterisierung des Wärmetransports in durchströmten porösen Medien von Schlünder und Tsotsas [88] eine effektive Wärmeleitfähigkeit vorgeschlagen. Diese Betrachtung wurde ursprünglich für Schüttungen eingeführt und fasst die Leitung und Strahlung der Feststoffphase und den konvektiven Wärmetransport der Gasphase durch Strömungsdispersion zusammen. In dieser Betrachtungsweise wird das Fluid-Feststoff-System als eine kontinuierliche Phase aufgefasst, wobei eine homogene Verteilung des Feststoffs im Raum angenommen wird. Die daraus folgende effektive Wärmeleitfähigkeit kann gemäß [88] durch folgende Gleichung ausgedrückt werden:

$$\lambda_{eff,i} = \lambda_{eff,rh} + \frac{\rho_f U_0 c_{p,f} d_{char}}{K_i} \quad i = ax, rad \quad (2.30)$$

Der erste Term auf der rechten Seite in Gl. 2.30 bezeichnet die zuvor diskutierte Ruhewärmeleitfähigkeit und der zweite Term den konvektiven Wärmetransport des durchströmenden Mediums aufgrund der Strömungsdispersion. Hierbei ist die Fluidichte mit ρ_f , die Leerrohrgeschwindigkeit mit U_0 , die charakteristische Länge mit d_{char} und der so genannte Mischungs faktor mit K_i bezeichnet. Ferner sollte der Tatsache höchste Wichtigkeit beigemessen werden, dass die Gleichung 2.30 nur für die Modellierungen solcher Prozesse, bei denen die Gas- und Feststoffphase als eine kontinuierliche Phase betrachtet werden, angewandt werden kann. Eine Modellierung der Verbrennung, in der diese zwei Phasen unterschieden werden, ist nicht möglich.

Hsu und Howell [90] führten die experimentelle Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit von PSZ-Schwämmen durch. Anhand der „Heiße Platte“-

Methode wurde die Ruhewärmeleitfähigkeit bestimmt. Unter Anwendung der Strahlungskorrektur wurde hierbei die reine Wärmeleitfähigkeit erfasst. Für die so ermittelte Wärmeleitfähigkeit wurde eine vernachlässigbare Temperaturabhängigkeit gemessen. Anhand der Messdaten leiteten die Autoren eine Beziehung für die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Porengröße wie folgt her:

$$\lambda [W/mK] = 0,188 - 0,0175 d_{pore} \quad (2.31)$$

mit $d [mm]$ sei der tatsächliche mittlere Porendurchmesser genannt und nicht der nominelle, der sich aus der PPI-Zahl ergibt. Diese Beziehung ist limitiert für den Temperaturbereich 290-890 K und den Porendurchmesserbereich 0,3-1,5 mm. Es wird deutlich, dass mit der Erhöhung der PPI-Zahl, d.h. der Verkleinerung des Porendurchmessers, die Wärmeleitfähigkeit eines Schwammes steigt, was in Übereinstimmung mit dem in Abb. 2.20 dargestellten Ergebnis ist.

Pan et al. [91] untersuchten effektive Wärmeleitfähigkeit von keramischen Schwämmen in beiden, axialer und radialer Richtung. Ihre experimentellen Ergebnisse zeigten, dass die effektive Wärmeleitfähigkeit eines SiC-Schwammes höher ist als die Wärmeleitfähigkeit eines Al_2O_3 -Schwammes bzw. eines $ZrO_2/Al_2O_3/SiO_2$ -Schwammes mit gleicher PPI-Zahl. Dies ist auf die sehr hohe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität des SiC-Materials zurückzuführen. Es zeigte sich weiterhin, dass für alle untersuchten Schwämme die axiale Wärmeleitfähigkeit höher als die radiale Wärmeleitfähigkeit ist.

Die in der Literatur veröffentlichten Daten für die effektive Wärmeleitfähigkeit eignen sich schlecht für die genaue Modellierung des Prozesses, in dem Gas- und Feststoffphase nicht als eine kontinuierliche Phase betrachtet werden können. Aufgrund der schwierigen Trennung der Wärmeleitungs- und Strahlungsbeiträge in Experimenten wurden auch mehrere Versuche durchgeführt, die sich mit analytischer Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit anhand von vereinfachten Einzelzellenstrukturmodellen („*single cell models*“) beschäftigen [92, 93, 94, 95]. Boomsma und Poulidakos [93] leiteten eine Korrelation zur Bestimmung der effektiven Wärmeleitfähigkeit fester Schwämme anhand des Kelvin-Modells her. Unter Vernachlässigung der Beiträge von Strahlung, Gaswärmeleitung und Konvektion resultiert dieses Model in einer Wärmeleitfähigkeit wie folgt:

$$\frac{\lambda_{PIM}}{\lambda_s} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \frac{4k}{2e^2 + \pi k(1-e)} + \frac{3e-2k}{e^2} + \frac{(\sqrt{2}-2e)^2}{2\pi k^2(1-2e\sqrt{2})} \right\}^{-1},$$

$$k = \sqrt{\frac{\sqrt{2}(2 - \frac{5}{8}e^3\sqrt{2} - 2\varepsilon)}{\pi(3 - 4e\sqrt{2} - e)}}, \quad (2.32)$$

$$e = 0,339$$

mit λ_s sei die Feststoffwärmeleitfähigkeit und ε sei die Schwammporosität.

2.1.3.2 Strahlungseigenschaften

Bei allen im vorherigen Abschnitt diskutierten Arbeiten liegt der Fokus auf dem Einfluss von strukturellen Parametern (Porosität, spezifische Oberfläche) auf die effektive Wärmeleitfähigkeit, wobei jedoch Strahlungseinflüsse aufgrund des meist geringen Temperaturniveaus unberücksichtigt bleiben. Weil aber die Wärmeübertragung durch Strahlung bei Temperaturen über 1000 K den überwiegenden Anteil der gesamten Wärmeübertragung darstellt, ist die Bestimmung der Strahlungseigenschaften der vernetzten Strukturen eine entscheidende Voraussetzung für die Berechnung des Gesamtwärmetransports durch feste Schwämme unter Verbrennungsbedingungen.

Üblicherweise wird für die Berechnung einer effektiven Wärmeleitfähigkeit undurchströmter Porenkörper eine einfache Superposition aus den Wärmeleitfähigkeiten des Feststoffes (s) und des Gases (g) sowie der sich aufgrund des Strahlungstransportes ergebenden Wärmeleitfähigkeit durch Strahlung (r) verwendet:

$$\lambda_{eff} = \lambda_s + \lambda_g + \lambda_r \quad (2.33)$$

Der Anteil der Wärmestrahlung an der Gesamtwärmeleitfähigkeit λ_r wird meist durch eine Rosseland-Gleichung beschrieben:

$$\lambda_r = \frac{16 \sigma_B T^3}{3\beta} \quad (2.34)$$

In diesem vergleichsweise einfachen Ansatz werden die effektiven Strahlungseigenschaften des Feststoffanteils in die Diffusionsgleichung durch den

temperaturabhängigen mittleren Extinktionskoeffizienten $\beta(T)$ eingekoppelt. Der Ansatz ist nur unter der Annahme optisch dichter Medien gültig, was im Fall fester Schwämme unter der Voraussetzung, dass die Probe ausreichend dick ist, als wahr anerkannt werden kann. σ_B bezeichnet die Stefan-Boltzmann-Konstante. Die Rosseland-Gleichung ist nur gültig, wenn das untersuchte Medium isotropisch absorbiert und streut. Messungen der Streuung eines Schwammes zeigten, dass dieses Phänomen stark anisotrop auftritt [96]. Aus diesem Grund ist es nötig, den Extinktionskoeffizienten in Gl. 2.34 durch einen korrigierten Extinktionskoeffizienten $\beta^*(T)$ zu ersetzen. Zur Bestimmung von β^* wird ein unter Berücksichtigung der Streuanisotropie gewichteter Streukoeffizient $\sigma_{s,\lambda}^*$ (Gl. 2.35) verwendet.

$$\begin{aligned} \sigma_{s,\lambda}^* &= \sigma_{s,\lambda} (1 - (\cos\theta)_\lambda) \\ \text{mit} & \\ (\cos\theta)_\lambda &= 0,5 \int_{-1}^1 \Phi_\lambda(\theta) \cos\theta d(\cos\theta) \end{aligned} \tag{2.35}$$

Hierbei bezeichnet $\Phi_\lambda(\theta)$ eine spektrale volumetrische Phasenfunktion mit θ als polarem Winkel. Nun ist es möglich den korrigierten spektralen Extinktionskoeffizienten β_λ^* wie folgt zu bestimmen:

$$\beta_\lambda^* = \alpha_\lambda + \sigma_{s,\lambda}^* \tag{2.36}$$

mit α_λ sei der spektrale volumetrische Absorptionskoeffizient.

Mit der Rosseland-Gleichung wird die Problematik der Bestimmung des Strahlungswärmetransportes auf die Bestimmung des Extinktionskoeffizienten als Strahlungseigenschaft zurückgeführt. Doermann und Sacadura [97] formulierten ein analytisches Modell für die Berechnung der Strahlungseigenschaften offenporiger Schwämme. Jedoch ist dieses Modell nicht experimentell validiert. Hsu und Howell [90] haben die effektive Wärmeleitfähigkeit von PSZ-Schwämmen verschiedener Porendichten experimentell ermittelt, und unter Anwendung eines Zwei-Fluss-Strahlungsmodells konnten die Autoren die Beiträge von Wärmeleitung und Strahlung zur Gesamtwärmeleitung trennen. Aus den anhand dieses Verfahrens gewonnenen Daten leiteten Hsu und Howell eine empirische Beziehung ab für den Extinktionskoeffizienten β [m^{-1}] eines festen Schwammes in Abhängigkeit von Strukturmerkmalen:

$$\beta = \frac{3}{d_{pore}} (1 - \varepsilon) \tag{2.37}$$

Hierbei bezeichnet d_{pore} den tatsächlichen (nicht nominellen) Porendurchmesser und ε die Schwammporosität. Hendricks und Howell [98] korrigierten die Gl. 2.37 anhand eigener Messdaten für beide, PSZ- und SiC-Schwämme. Diese Korrektur resultierte in einem integralen Extinktionskoeffizienten wie folgt:

$$\beta = \frac{4,4}{d_{pore}}(1 - \varepsilon) \quad (2.38)$$

Argento und Bouvard [99] und von Tancrez und Taine [100] stellten die numerischen Methoden für die Berechnung der Strahlungseigenschaften auf der Basis bekannter Geometrie der Mikrostruktur vor. Die dort verwendete numerische Methode der „Monte-Carlo-Simulation“ basiert auf einer statistischen Beschreibung der Strahlung. Dabei werden die Strahlengänge von repräsentativen Photonen verfolgt und jeweils die Strahlungstransportgleichungen für diese Photonen gelöst. Die längs des Weges auftretenden Anteile Reflektion, Absorption und Transmission werden dabei mit einbezogen. Hierbei wird die Genauigkeit der Methode lediglich durch die Anzahl der berücksichtigten Photonen beschränkt. Um die unbekannt Strahlungseigenschaften zu quantifizieren, kombinierten Petrasch et. al. [101] erstmals die aus [100] bekannte Berechnungsmethodik zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften mit der experimentell bestimmten Geometrie von porösen Strukturen. Dabei wurden die geometrischen Daten tomografisch rekonstruiert. Die Autoren untersuchten die Richtungsabhängigkeit der Streufunktion an der Oberfläche der vernetzten Strukturen. Als Fazit wurde eine nur geringe Sensitivität der Gesamtstrahlung auf die richtungsabhängige Streufunktion festgestellt.

Neben der einfachen Rosseland-Beziehung (Gl. 2.35) bestehen weitere detaillierte Berechnungsmöglichkeiten des Strahlungswärmeaustausches in dispersen Medien, wenn einmal die Strahlungstransporteigenschaften bekannt sind. Die Lösung der Strahlungstransportgleichung wird anhand verschiedener numerischer Verfahren erfasst: Diskrete ordinate [102, 103, 104, 105, 106] und FVM [107]. Ein umfangreicher Überblick über die verschiedenen Modelle des Strahlungswärmeaustausches in dispersen Medien wurde von Viskanta und Mengüç [108] gegeben.

2.1.3.3 Wärmeübergangskoeffizient

Entwicklung und Optimierung der Prozesse innerhalb der vernetzten Strukturen benötigen mathematische Modellierung solcher Systeme, was wiederum die Kenntnisse der charakteristischen Wärmetransporteigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit, Strahlungsparameter und Wärmeübergangskoeffizient erfordert. Die in der Schwammstruktur vorhandene geometrische Komplexität und randome Orientierung

der festen Phase verhindern die exakten Lösungen der Transportgleichungen auf der Porenebene. Auf der anderen Seite setzt die empirische Behandlung die experimentelle Bestimmung mehrerer Parameter voraus. In dem Zusammenhang steht auch die Frage der geeigneten charakteristischen Länge für die Beschreibung des Wärmeübergangsproblems noch offen.

Eine Möglichkeit besteht in Prozessmodellierung, bei der der Schwamm als ein pseudo-homogenes Medium betrachtet wird. In diesem Fall können alle Wärmetransportvorgänge in porösen vernetzten Strukturen durch einen gesamten Koeffizienten – die effektive Wärmeleitfähigkeit, wie in vorherigen Abschnitten schon besprochen (siehe Gl. 2.30 und Gl. 2.33), beschrieben werden. Decker et al. [109] ermittelten die effektive Wärmeleitfähigkeit fester Schwämme anhand von beiden, numerischer Modellierung und experimenteller Untersuchung. Bhattacharya et al. [110] schlugen ein Modell, basierend auf einer zwei-dimensionalen Matrix aus hexagonalen Zellen, zur Bestimmung der effektiven Wärmeleitfähigkeit von Schwammstrukturen vor und validierten das Modell durch Experimente. Der kombinierte Wärmetransport aus konduktivem und konvektivem Wärmetransport in einem 10 PPI metallischen Schwamm wurde anhand eines ein-dimensionalen Modells durch die Betrachtung des Schwammes als eine verlängerte Lamelle in [111] untersucht. Das Modell basiert nur auf den typischen vom Hersteller gegebenen Schwammparametern. Das analog durchgeführte Experiment zeigte eine gute Übereinstimmung mit dem vorgeschlagenen Modell. Das Modell sagte voraus, dass ab einer bestimmten Re-Zahl der resultierte Wärmetransport unabhängig von der Re-Zahl wird, und dass eine weitere Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit (d.h. Re-Zahl) nicht in einem besseren Wärmeübergang resultieren würde.

Die Modellierung solcher Wärmetransportvorgänge, bei denen zwischen Gas- und Feststoffphase unterschieden wird, setzt die Bestimmung jedes einzelnen Wärmetransportparameters voraus. In diesem Zusammenhang führten Younis und Viskanta [112] eine ausführliche experimentelle Charakterisierung von Al_2O_3 -Schwämmen verschiedener Porengrößen mit Ermittlung der volumetrischen Wärmeübergangskoeffizienten bei 70°C durch. Da es schwierig ist, eine geometrische Feststoffoberfläche in einem Schwamm zu bestimmen, wird üblicherweise ein auf der spezifischen Oberfläche basierender, volumetrischer Wärmeübergangskoeffizient α_V verwendet:

$$\alpha_V = \alpha \cdot S_V \quad \left[\frac{W}{K m^3} \right] \quad (2.39)$$

Darüber hinaus, wird die volumetrische Nusselt-Zahl Nu_V mit dem volumetrischen Wärmeübergangskoeffizient α_V wie folgt definiert:

$$Nu_V = \frac{\alpha_V \cdot d_{char}^2}{\lambda_g} \quad (2.40)$$

Hierbei kommt die charakteristische Länge untypisch mit der zweiten Potenz in die Definition der Nu-Zahl, um die Volumeneinheit in α_V zu kompensieren. Die poröse Matrix schließt tortuöse Strömungswege irregulärer Form ein, was eine schwierige Definition der für den Wärmeübergang charakteristischen Länge zur Folge hat. Trotz seiner sehr aufwändigen experimentellen Ermittlung schlugen Younis und Viskanta [112] den mittleren Porendurchmesser als charakteristische Länge für die Definition von Nu- und Re-Zahl vor. Der aus den Experimenten ermittelte volumetrische Wärmeübergangskoeffizient für die Schwämme verschiedener Porengrößen in Abhängigkeit vom mittleren Porendurchmesser ist in Abb. 2.21 gezeigt. Es wird deutlich, dass der volumetrische Wärmeübergangskoeffizient mit steigender Porengröße sinkt. Dieses Phänomen kann durch die mit der Steigerung der PPI-Zahl verbundene Vergrößerung der spezifischen Oberfläche (siehe Gl. 2.39) erklärt werden. Darüber hinaus wurden die experimentellen Daten in [112] als Beziehungen zwischen Nu- und Re-Zahl für jeden untersuchten Schwamm korreliert. Die Messergebnisse zusammen mit den entsprechend erstellten Korrelationen sind in Abb. 2.22 gegeben.

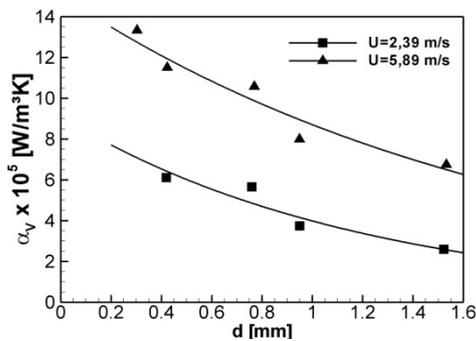


Abbildung 2.21: Der volumetrische Wärmeübergangskoeffizient als Funktion des mittleren Porendurchmessers [112]

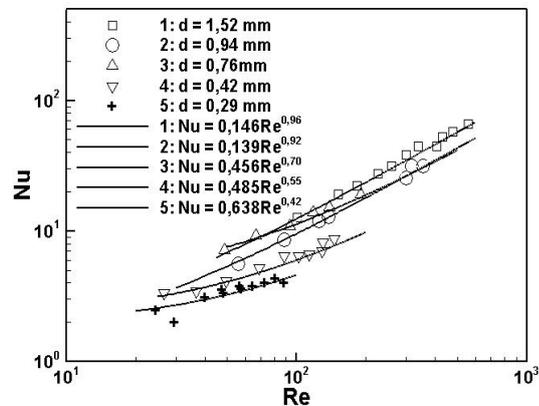


Abbildung 2.22: Beziehung zwischen Nu- und Re-Zahl für Al_2O_3 -Schwämme verschiedener Porengröße [112]

Es wird ersichtlich, dass die PPI-Zahl einen starken Einfluss auf die Nu-Re-Beziehung hat. Dabei sinkt der Exponent der Re-Zahl in dieser Beziehung mit steigender PPI-Zahl. Ferner leiteten die Autoren eine allgemeine Beziehung für die Nu-Zahl in Abhängigkeit von der Re-Zahl, dem Porendurchmesser d und der Probenlänge L aus den experimentellen Ergebnissen her (Gl. 2.41).

$$Nu_V = 0,819 \left[1 - 7,33 \left(\frac{d_{pore}}{L} \right) \right] Re^{0,36 \left[1 + 15,5 \left(\frac{d}{L} \right) \right]} \quad (2.41)$$

Der konvektive Wärmeübergangskoeffizient in keramischen Schwammstrukturen aus Cordierite wurde von Schlegel et al. [113] gemessen. Hierbei wurde als charakteristische Länge für die Definition der Re- und Nu-Zahl der hydraulische Durchmesser d_h verwendet.

$$d_h = \frac{4\varepsilon}{S_V}$$

$$Re = \frac{\rho_g \cdot U_0 \cdot d_h}{\varepsilon \cdot \mu_g} \quad (2.42)$$

$$Nu = \frac{\alpha \cdot d_h}{\lambda_g}$$

Diese Untersuchung resultierte in je einer Beziehung in Form der Gleichung 2.43 für die Schwämme unterschiedlicher Porendichte. Die entsprechenden Koeffizienten sind in Tab. 2 gegeben.

$$Nu = C \cdot Re^m \cdot Pr^n \quad (2.43)$$

Die Messergebnisse zeigten, dass die keramischen Schwämme über den gesamten untersuchten Geschwindigkeitsbereich ähnliche α -Werte aufweisen, obwohl sich die spezifischen Oberflächen und der hydraulische Durchmesser sehr stark unterscheiden. Erst durch die Darstellung der volumetrischen Wärmeübergangskoeffizienten (Gl. 2.39) werden die Unterschiede der einzelnen Schwämme deutlich. Aus diesem Grund sind die unterschiedlichen Werte der Wärmeübergangskoeffizienten hauptsächlich auf die unterschiedlichen spezifischen Oberflächen zurückzuführen [113].

Tabelle 2.2 [113]: Koeffizienten für die Nu-Re Beziehung und der untersuchte Re-Zahl-Bereich für die Cordierite-Schwämme unterschiedlicher Porendichte

PPI	C	m	n	Re
10	1,26	0,47	0,333	180-2840
20	1,077	0,43	0,333	60-1000
30	0,801	0,42	0,333	40-790
50	1,601	0,27	0,333	28-390

Peng und Richardson [114] berichteten von dem Wärmeübergangskoeffizienten für einen Al_2O_3 -Schwamm, welcher für einen großen Temperaturbereich 25-400°C bestimmt wurde. Eine experimentelle Ermittlung der volumetrischen Wärmeübergangskoeffizienten der Schwämme unterschiedlicher Porendichten und aus verschiedenen Materialien (Cordierite, SiC-SSiC und SiC-CBSiC) wurde in [115] durchgeführt.

Darüber hinaus wurde eine Analogie zwischen dem Druckverlust und Stoff- und Wärmeübergang für die verschiedenen periodischen Anordnungen von Festkörpern in der Strömung festgestellt. Die so genannte L  v  que-Analogie wurde von Martin [116, 117] in Form der allgemeinen L  v  que-Gleichung (ALG) wie folgt eingef  hrt:

$$Nu/Pr^{1/3} = Sh/Sc^{1/3} = 0,4038 (2 \cdot x_{fr} \cdot Hg \cdot d_h / L)^{1/3} \quad (2.44)$$

$Hg = (\rho_f \Delta p / \Delta z) L_{char}^3 / \mu_f^2$ sei die Haagen-Zahl, die mit dem Druckgradienten $\Delta p / \Delta z$ korreliert. Hierbei sei x_{fr} der Reibungsanteil des totalen Druckverlusts, wobei d_h den hydraulischen Durchmesser bezeichnet.

Schabel et al. [118] f  hrten eine Untersuchung der G  ltigkeit der L  v  que-Analogie f  r die festen Schw  mme anhand der in der Literatur vorhandenen Daten f  r den Druckverlust und die entsprechenden W  rme  bertragungskoeffizienten. Diese auf die schon existierenden Daten begrenzte Untersuchung zeigte, dass die ALG (Gl. 2.44) das thermische und str  mungsdynamische Verhalten fester Schw  mme mindestens qualitativ beschreiben kann.

2.2 Vorgemischte Verbrennung

Im Fokus der vorliegenden Arbeit liegt die Vormischverbrennung in festen keramischen Schwämmen, welche durch eine laminare Flammenausbreitung gekennzeichnet ist. Die Kenntnisse über die mit der laminaren Flammenausbreitung verbundenen Vorgänge sind für das weitere Verständnis der vorliegenden Arbeit erforderlich und bilden die Grundlage zum Verständnis des Kapitels 4, wo die Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt werden. In diesem Kapitel soll daher ein kurzer Überblick über die Struktur der laminaren Vormischflamme gegeben werden. Im Anschluss werden die in Literatur verfügbaren Daten bezüglich der Vormischverbrennung in einem Porenbrenner vorgestellt und diskutiert.

2.2.1 Laminare Vormischflamme

Die grundlegenden Vorgänge in einer laminaren Vormischflamme lassen sich vereinfacht am Beispiel einer eindimensionalen adiabaten Flammenfront erläutern. Zündet man ein in ein Rohr eintretendes Gasgemisch in einem Abstand stromab von dem Rohreintritt, bewegt sich eine planare Flammenfront, ausgehend vom Zündfunken, der Strömung entgegen (Abb. 2.23). Hierbei wird die Annahme gemacht, dass sich die Strömungsgeschwindigkeit in y -Richtung nicht ändert. Durch die Veränderung der Strömungsgeschwindigkeit kann ein stationärer Zustand eingestellt werden, welcher durch das Gleichgewicht zwischen der Anströmgeschwindigkeit und der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flammenfront bestimmt ist. Zusätzlich ist in Abb. 2.23 das sich aus der freigesetzten Wärme bildende axiale Temperaturprofil erläutert.

Alle hier dargestellten Betrachtungen beziehen sich auf Methan-Flammen, da diese den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit bilden, sie sind jedoch auch für alle anderen gasförmigen Brennstoffe gültig. Die ebene Flammenfront wird durch die Erhaltungsgleichungen für Masse, Spezies, Impuls und Energie mathematisch beschrieben [119]. Mit dem auf der CHEMKIN-Programmbibliothek basierenden Code PREMIX [120] ist es möglich, dieses Gleichungssystem unter Verwendung detaillierter Chemie zu lösen. In Abbildung 2.24 sind mit dem Reaktionsmechanismus nach Egolfopoulos [121] berechneten Verläufe der Temperatur, der Edukte, der Produkte und der Zwischenspezies H_2 für eine Methan-Luft-Vormischflamme bei einer Luftzahl von 1,4 und unter der Standardbedingung ($p=1$ atm, $T=298$ K) aufgetragen. Daraus ist ersichtlich, dass sich in einer laminaren Flammenfront drei Bereiche unterscheiden lassen. Die unverbrannten Reaktanten mit der Eingangstemperatur T_U werden in der Vorwärmzone auf die Zündtemperatur T_Z aufgeheizt. Die Temperaturerhöhung des anströmenden Gasgemisches ist vor allem durch diffusive Transportvorgänge von heißen Spezies und Wärme bedingt. In dieser Zone findet in erster

Näherung keine Wärmefreisetzung statt [122]. Die eigentlichen chemischen Umwandlungen des Brennstoffes zu den Zwischenprodukten H_2 und CO sind mit der Wärmefreisetzung verbunden und erfolgen erst in der Reaktionszone. Die dadurch freigesetzte Wärme führt zum Aufbau der für den molekularen Transport in Richtung Vorwärmzone benötigten Gradienten.

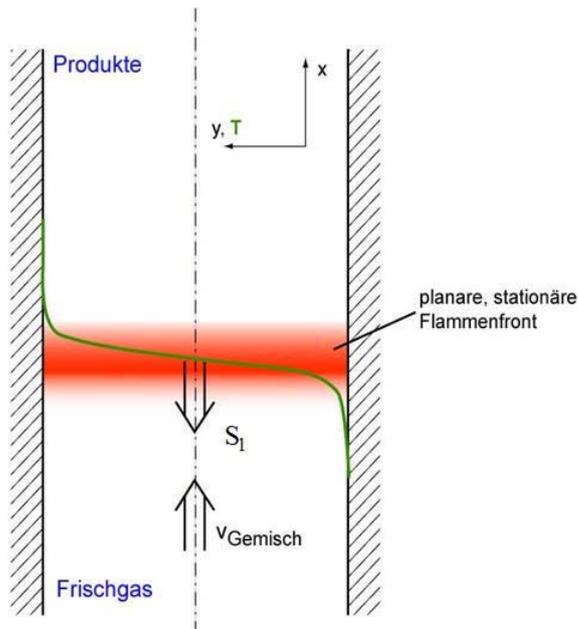


Abbildung 2.23: Schematische Darstellung einer planaren stationären Flammenfront

Die Bildung der Produkte geschieht durch teilweise parallele, konkurrierende Reaktionspfade über die Bildung intermediärer Spezies. Die hierbei gebildeten hoch aktiven Radikale sind unter anderem an folgenden prinzipiellen Reaktionsschritten beteiligt:

Kettenstartreaktionen, z.B. $CH_4 \Leftrightarrow CH_3 + H$

Kettenverzweigungsreaktionen, z.B. $H + O_2 \Leftrightarrow OH + O$

Kettenfortpflanzungsreaktionen, z.B. $CO + OH \Leftrightarrow CO_2 + H$

Abbruchreaktionen, z.B. $H + H + M \Leftrightarrow H_2 + M$.

Vor Beginn der eigentlichen Reaktionszone finden mit der Temperaturerhöhung die Startreaktionen zur Bildung eines Radikalenpools (Induktionsphase) statt [123]. Die durch Radikale bedingten Kettenreaktionen des Brennstoffabbaus erfolgen aufgrund ihrer hohen chemischen Aktivität sehr rasch, so dass die Reaktionszone um ein Vielfaches dünner als die Vorwärmzone ist. Im Anschluss an die Reaktionszone folgt die Ausbrandzone, in der die stabilen Zwischenprodukte zu den Verbrennungsprodukten CO_2 und H_2O oxidiert werden (siehe Abb. 2.24). Diese Reaktionen verlaufen deutlich langsamer ab als die Reaktionen, die den Brennstoffabbau bestimmen. Sie

sind für die Bestimmung der Flammgeschwindigkeit von nachgeordneter Bedeutung [124]. Die Rauchgase am Ende der Ausbrandzone sind im chemischen Gleichgewicht und weisen die adiabate Verbrennungstemperatur T_B auf.

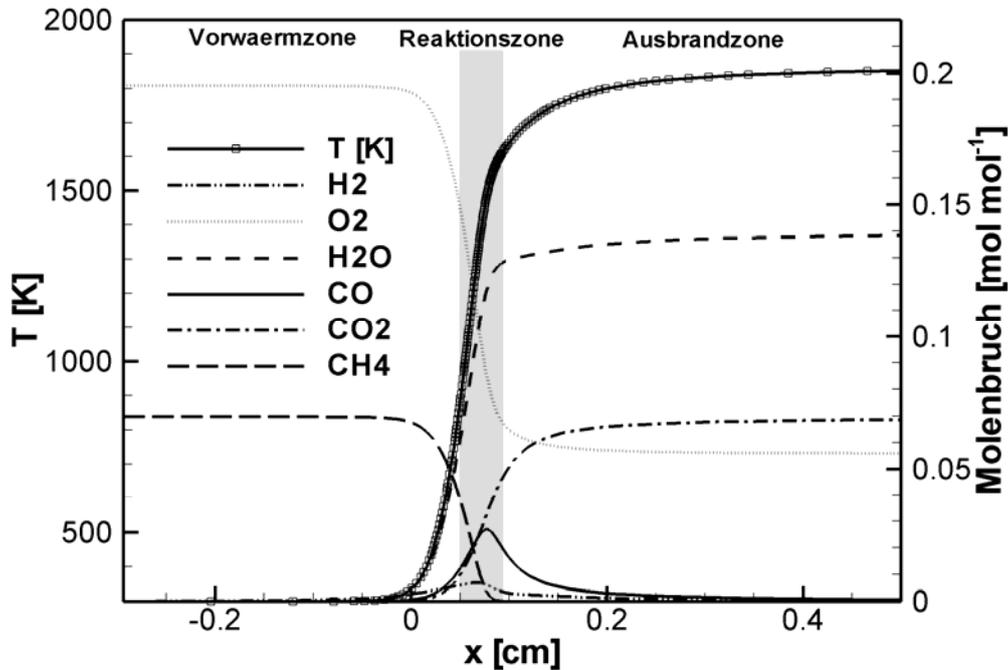


Abbildung 2.24: Die Berechnete Temperatur- und Konzentrationsverläufe für eine Methan-Luft-Vormischflamme ($\lambda=1,4$; $p=1\text{atm}$; $T=298\text{K}$)

2.2.1.1 Brenngeschwindigkeit und Flammenstabilität

Die laminare Brenngeschwindigkeit S_l ist diejenige Geschwindigkeit, mit welcher sich eine Flamme in der Richtung normal zur Front relativ zum anströmenden Frischgasgemisch ausbreitet. Folglich ist im stationären Zustand lokal zur Flammenfront die normale Komponente der Anströmgeschwindigkeit gleich der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flammenfront, d.h. der Brenngeschwindigkeit (siehe Abb. 2.23). Nach der rein thermischen Theorie und mit der vorherigen Betrachtung der Flammenstruktur (Abb. 2.24) kann man die Flammenfront hauptsächlich in zwei Zonen unterteilen: In der *Vorwärmzone* wird das anströmende unverbrannte Gasgemisch durch die Wärmeleitung entgegen der Anströmungsrichtung auf die Zündtemperatur T_Z aufgeheizt, in der anschließenden *Reaktionszone* laufen die chemischen Reaktionen ab. Über eine Energiebilanz der Vorwärmzone lässt sich unter der An-

nahme, dass die von der Reaktionszone in die Vorwärmzone transportierte Energie gerade ausreicht, um das anströmende Gemisch von der Anfangstemperatur T_U auf die Zündtemperatur T_Z aufzuheizen, der Zusammenhang zwischen Brenngeschwindigkeit und Flammendicke δ abschätzen. Die Energiebilanz um die Vorwärmzone lautet (siehe Abb. 2.25):

$$U_0 \rho_U \overline{c_p} (T_Z - T_U) = \lambda_Z \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{T_Z}. \quad (2.45)$$

Dabei ist $\overline{c_p}$ die über den Temperaturbereich von T_U bis T_Z gemittelte spezifische Wärmekapazität, ρ_U die Dichte des Frischgasgemisches bei der Temperatur T_U und λ_Z die Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches bei der Temperatur T_Z . Unter der Annahme eines linearen Temperaturverlaufs entlang der Vorwärmzone der Dicke δ_{VW} wird Gl. 2.45 zu:

$$U_0 \rho_U \overline{c_p} (T_Z - T_U) = \lambda_Z \frac{(T_Z - T_U)}{\delta_{VW}}. \quad (2.46)$$

Durch Umformung lässt sich der folgende Ausdruck herleiten:

$$U_0 = \frac{\lambda_Z}{\rho_U \overline{c_p} \delta_{VW}} = \frac{\overline{a}}{\delta_{VW}}, \text{ mit Temperaturleitzahl } \overline{a} = \frac{\lambda_Z}{\rho_U \overline{c_p}}. \quad (2.47)$$

An dieser Stelle muss betont werden, dass die Parameter λ_Z und ρ_U in zwei unterschiedlichen Orten bzw. bei zwei unterschiedlichen Temperaturen definiert sind. Wie zuvor erläutert, gilt im stationären Zustand für eine planare laminare Flammenfront die folgende Beziehung:

$$U_0 = -S_l. \quad (2.48)$$

Daraus folgt:

$$S_l = \frac{\overline{a}}{\delta_{VW}}. \quad (2.49)$$

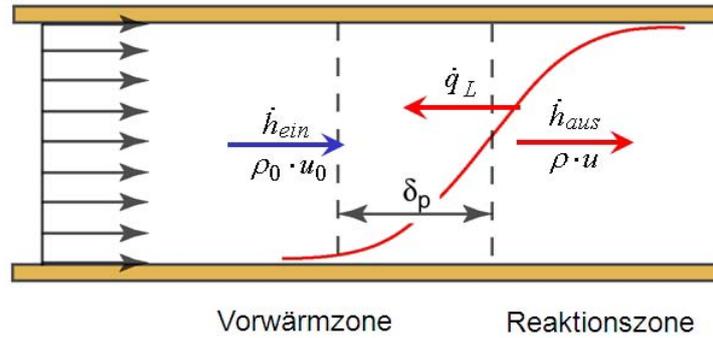


Abbildung 2.25: Schematische Darstellung der Energiebilanz um die Vorwärmzone einer planaren Flamme

Durch Experimente wurde bestätigt, dass der Temperaturverlauf in der gesamten Flammenfront in grober Näherung linear ist:

$$\frac{\Delta T_R}{\delta_R} = \frac{\Delta T_{VW}}{\delta_{VW}}. \quad (2.50)$$

Aus Gl. 2.50 und Gl. 2.46 folgt:

$$U_0 \rho_U \bar{c}_p \Delta T_{VW} = \lambda_Z \frac{\Delta T_R}{\delta_R}, \quad (2.51)$$

$$\delta_{VW} + \delta_R = \delta = \frac{\bar{a}}{U} \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}}.$$

Da in der Reaktionszone die Umwandlung der chemisch gebundenen Energie in die fühlbare Wärme erfolgt, genügt die gesamte Wärmebilanz folgender Gleichung:

$$\dot{m} c_p \Delta T = -H_i \delta \overline{\dot{m}_{BS}}. \quad (2.52)$$

wobei \dot{m} die Massenstromdichte [$\text{kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$] und \dot{m}_{BS} die Brennstoffabbaurrate [$\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$] bezeichnen.

Für die Verbrennungsreaktion:



gilt:

$$H_i = (\nu + 1) c_p \Delta T \quad (2.54)$$

Aus den Gleichungen 2.52 und 2.54 folgt:

$$\dot{m} c_p \Delta T = -(\nu + 1) c_p \Delta T \delta \overline{\dot{m}_{BS}} \quad (2.55)$$

Gleichung 2.55 lässt sich umformen wie folgt:

$$\frac{\delta}{U_0} = \frac{\rho_U}{(\nu + 1) \overline{\dot{m}_{BS}}} \quad (2.56)$$

Aus den Gleichungen 2.51 und 2.56 folgt:

$$U_0 = S_l = \sqrt{-a(\nu + 1) \frac{\overline{\dot{m}_{BS}}}{\rho_U} \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}}} \quad (2.57)$$

und

$$\delta = \sqrt{-\frac{a \rho_U}{(\nu + 1) \overline{\dot{m}_{BS}}} \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}}} \quad (2.58)$$

Die in Gl. 2.57 gegebene Relation spiegelt das grundlegende Phänomen der Flammenausbreitung wider und zeigt, dass sich die Brenngeschwindigkeit aus der direkten Kopplung zwischen der Reaktion und dem Prozess der Wärmeleitung ergibt. In Gl. 2.57 werden die Wärmeleitungsprozesse durch die Temperaturleitzahl a repräsentiert, und die Reaktionskinetik ist durch die Brennstoffabbaurate $\overline{\dot{m}_{BS}}$ gegeben. Eine der ersten theoretischen Arbeiten auf diesem Gebiet von Mallard und LeChâtelier [125] ergab den gleichen Zusammenhang zwischen laminarer Brenngeschwindigkeit, Reaktion und Mischungsprozessen.

Aufbauend auf den Größen S_l und δ kann ein globales Zeitmaß für die Wärmefreisetzung eingeführt werden:

$$\tau \sim \frac{\delta}{S_l} \quad (2.59)$$

Das Zeitmaß für die Wärmefreisetzung charakterisiert diejenige Zeit, welche die Flamme benötigt, um eine Strecke zurückzulegen, welche ihrer eigenen Dicke entspricht. Im Gegensatz zum reaktionskinetischen Zeitmaß, wobei vom idealen Mischer (Rührkessel) ausgegangen wird, liegen dem Zeitmaß für die Wärmefreisetzung zusätzlich die diffusionsbasierten Mischungsprozesse zugrunde, die sich aus den in einer Flamme vorliegenden Temperatur- und Konzentrationsgradienten ergeben.

Aus den Gleichungen 2.49, 2.51 und 2.59 folgt:

$$\tau \sim \frac{a}{S_l^2} \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}} \Rightarrow \quad (2.60)$$

$$\tau \sim \frac{a}{S_l^2} + \frac{a}{S_l^2} \frac{\Delta T_R}{\Delta T_{VW}} \Rightarrow \quad (2.61)$$

$$\tau = \tau_{VW} + \tau_R . \quad (2.62)$$

Durch das Umformen von Gl. 2.60 ergibt sich:

$$S_l \sim \sqrt{\frac{a}{\tau} \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}}} \quad \text{und} \quad (2.63)$$

$$\delta \sim \sqrt{a \tau \frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}}} . \quad (2.64)$$

Einflussparameter der laminaren Brenngeschwindigkeit

Die fundamentalen Einflussparameter der laminaren Brenngeschwindigkeit können durch eine Parameteranalyse der Gl. 2.57 bestimmt werden. Die molare Brennstoffabbaurate kann mit folgender Beziehung ausgedrückt werden:

$$\dot{\omega}_{BS} = -A_f \rho_R^n \left(\frac{\bar{Y}_{BS}}{M_{BS}} \right)^\alpha \left(\frac{\bar{Y}_L}{M_L} \right)^\beta \exp\left(-\frac{E_A}{R T_R} \right). \quad (2.65)$$

$n = \alpha + \beta$ ist hierbei die Gesamtordnung der Reaktion, wobei α bzw. β die Reaktionsordnung im Bezug auf Brennstoff bzw. Luft bezeichnen. Jede Größe in Gl. 2.57 wird, unter der Annahme, dass $\frac{\Delta T}{\Delta T_{VW}} \approx 2$ sei, im Folgenden in Abhängigkeit der Prozessparameter (T und p) ausgedrückt.

Mit

$$\lambda(\bar{T}) \sim \bar{T}^{1/2}$$

und

$$\rho_U \sim \frac{p}{T_U}$$

ergibt sich (2.66)

$$a \sim \frac{\lambda(\bar{T})}{c_p(\bar{T}) \rho_U} \sim \frac{\bar{T}^{-1/2} T_U}{p} \sim \bar{T}^{-1/2} T_U p^{-1}.$$

Hierbei wird die Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität als schwach angenommen und deshalb nicht betrachtet. Aus Gl. 2.65 folgt:

$$\frac{\overline{\dot{m}_{BS}}}{\rho_U} \sim \frac{T_U}{p} \frac{p^n}{T_R^n} \exp\left(\frac{E_A}{R T_R}\right) \sim T_U T_R^{-n} p^{n-1} \exp\left(\frac{E_A}{R T_R}\right). \quad (2.67)$$

Aus Gl. 2.57, 2.66 und 2.67 ergibt sich:

$$S_l \sim \left[T_U^2 \bar{T}^{-1/2} T_R^{-n} p^{n-2} \exp\left(\frac{E_A}{R T_R}\right) \right]^{1/2}. \quad (2.68)$$

Die mit Gl. 2.68 gegebene Beziehung ermöglicht trotz der angenommenen Vereinfachungen einen Einblick, in welcher Weise die Prozessparameter die Brenngeschwindigkeit beeinflussen. Temperaturleitzahl a und Dichte ρ_U sind von der Temperatur des Frischgasgemisches T_U abhängig. Daraus resultiert eine starke Abhängigkeit der laminaren Brenngeschwindigkeit von diesem Prozessparameter, wobei eine Erhöhung der Vorwärmtemperatur T_U eine Erhöhung der Brenngeschwindigkeit zur Folge hat. Die Druckabhängigkeit der Brenngeschwindigkeit wird durch die Reaktionsordnung n beeinflusst: für $n \leq 2$ sinkt die Brenngeschwindigkeit mit steigendem Druck, für $n > 2$ führt eine Druckerhöhung zu einer Vergrößerung der Brenngeschwindigkeit. Die komplizierte Abhängigkeit der Brenngeschwindigkeit von der Reaktionstemperatur T_R kann durch Differenzieren der Gleichung 2.68 wie folgt erläutert werden:

$$\frac{\partial S_l^2}{\partial T_R} > 0 \quad \Rightarrow \quad T_R < \frac{E_A}{R n} \quad (2.69)$$

Da die Bedingung in Gl. 2.69 für reale Systeme immer erfüllt ist, kann daraus geschlossen werden, dass die laminare Brenngeschwindigkeit mit wachsender Reaktionstemperatur T_R steigt. Die Reaktionstemperatur ist für das adiabate System nur von der Luftzahl abhängig und weist ein Maximum für $\lambda \approx 1$ auf. Demzufolge weist die laminare Brenngeschwindigkeit die in Abb. 2.26 dargestellte Abhängigkeit der Luftzahl auf. Abb. 2.26 zeigt die mittels eindimensionaler Simulation mit dem Reaktionsmechanismus nach Egolfopoulos [121] berechneten laminaren Brenngeschwindigkeiten für verschiedene brennbare Gasgemische bei atmosphärischem Druck und einer Lufteinlasstemperatur von 300 K.

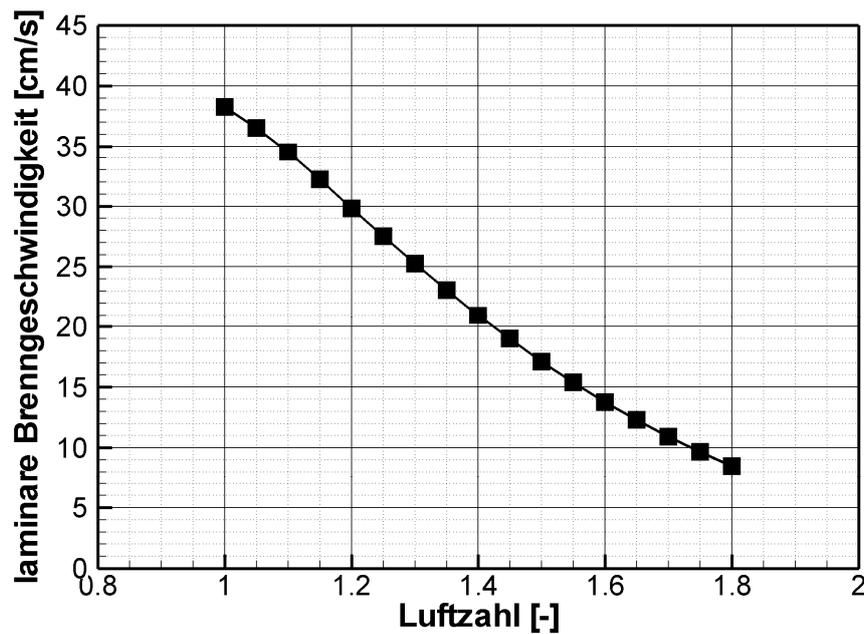


Abbildung 2.26: Laminare Brenngeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Luftzahl im mageren Bereich für die Vorwärmtemperatur 300 K

2.2.2 Schadstoffemissionen

Den aus den Verbrennungsprozessen emittierten Schadstoffen - wie z.B. Stickstoffmonoxid, Stickstoffdioxid (beide als NO_x zusammengefasst) und Kohlenmonoxid - werden negative Auswirkungen auf die Umwelt in den Bereichen Ozonbildung in der Troposphäre, Luftqualität in Ballungsräumen und die Versäuerung der Böden zugeschrieben. Aus diesen Gründen werden in den letzten Jahren starke Bestrebungen unternommen, diese Emissionen schon durch Primärmaßnahmen, d.h. durch Veränderung des Verbrennungsprozesses selbst, zu vermindern. Da das in dieser Arbeit untersuchte Porenbrennerkonzept eine der möglichen Primärmaßnahmen zur Minderung sowohl der NO_x - als auch der CO -Emissionen darstellt, sind die Kenntnisse der Bildungswege dieser Stoffe zum Verständnis der Mechanismen ihrer Reduktion erforderlich. Daher werden die relevanten Reaktionsmechanismen in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

2.2.2.1 Stickoxid-Bildung

Bei der Stickoxid-Bildung wird, basierend auf der Herkunft des Stickstoffs, zwischen zwei Bildungswegen unterschieden: NO -Bildung aus molekularem Luftstickstoff und NO -Bildung aus brennstoffgebundenem Stickstoff. Die Bildung von Stickstoffmonoxid aus Luftstickstoff kann wiederum auf zwei unterschiedlichen Bil-

dungswegen erfolgen: Bildung bei hohen Temperaturen nach dem thermischen Mechanismus und Bildung bei niederen Temperaturen nach dem Prompt-NO-Mechanismus. Durch das Konzept des Porenbrenners kann die Bildung von thermischem NO (Zeldovich NO) wirksam gemindert werden. Daher wird der entsprechende Bildungsmechanismus im Weiteren detailliert beschrieben. Die weiteren Bildungsmechanismen werden dagegen nur der Vollständigkeit halber und entsprechend kurz dargestellt.

Thermisches NO (Zeldovich-NO)

Der schon im Jahre 1946 von Zeldovich [126] postulierte Mechanismus der NO-Bildung aus dem in Verbrennungsluft enthaltenen Stickstoff beinhaltet zwei Elementarreaktionen:



Hierbei wird die starke dreifache Bindung im Stickstoffmolekül in der Reaktion R1 durch atomaren Sauerstoff aufgebrochen und ein Stickstoffatom und ein Stickoxidmolekül werden gebildet. Diese Reaktion benötigt eine hohe Aktivierungsenergie und läuft daher erst ausreichend schnell bei sehr hohen Temperaturen ab, was den Namen „thermisch“ für diesen Mechanismus begründet. Die Reaktion R2, in der das in der Reaktion R1 gebildete Stickstoffatom mit dem Luftsauerstoff reagiert, führt weiter zur Bildung des Stickstoffmonoxids unter Freisetzung eines Sauerstoffatoms. Unter fetten Bedingungen (Luftmangel) muss nach Fenimore [127] eine zusätzliche Reaktion berücksichtigt werden, die parallel zu R2 verläuft:



Die Rückwärtsreaktionen von R1-R3 können vernachlässigt werden, da die Stickoxidkonzentration in technischen Feuerungssystemen weit unterhalb des Gleichgewichts liegt [128, 129]. Die Reaktionskoeffizienten der oben aufgeführten Elementarreaktionen sind in Tab. 2.3 gegeben. Aufgrund ihrer relativ niedrigen Geschwindigkeit ist die Reaktion R1 der geschwindigkeitsbestimmende Schritt bei der thermischen NO-Bildung. Wie schon diskutiert, benötigt die Reaktion R1 eine sehr hohe Aktivierungsenergie (ca. $3,2 \cdot 10^5 \text{ Jmol}^{-1}$ [130]), weshalb der Geschwindigkeitskoeffizient k_1 eine starke Temperaturabhängigkeit aufweist. Diese Abhängigkeit wurde aus dem in Tab. 2.3 gegebenen Ausdruck berechnet und in Abb. 2.27 dargestellt. Es wird ersichtlich, dass die wesentlichen NO-Bildungsraten erst für Prozesstemperaturen höher als 1700 K festzustellen sind [131].

Tabelle 2.3: Geschwindigkeitskoeffizienten der Elementarreaktionen nach dem thermischen Mechanismus der NO-Bildung [132]

Reaktion	Geschwindigkeitskoeffizient [cm ³ mol ⁻¹ s ⁻¹]
R1	$1,8 \cdot 10^{14} \exp\left[-318 \text{ kJ mol}^{-1} / (RT)\right]$
R2	$9,0 \cdot 10^9 \exp\left[-27 \text{ kJ mol}^{-1} / (RT)\right]$
R3	$2,8 \cdot 10^{13}$

Gemäß der Reaktionen R1-R3 kann die Produktionsrate von Stickoxid wie folgt ausgedrückt werden:

$$\frac{d[NO]}{dt} = k_1 [O][N_2] + k_2 [N][O_2] + k_3 [N][OH]. \quad (2.73)$$

Weiterhin ist die Produktionsrate von atomarem Stickstoff mit folgender Gleichung beschreibbar:

$$\frac{d[N]}{dt} = k_1 [O][N_2] - k_2 [N][O_2] - k_3 [N][OH]. \quad (2.74)$$

Das in der Reaktion R1 gebildete Stickstoffatom reagiert sehr schnell in den Reaktionen R2 und R3 weiter, so dass Quasistationarität vorausgesetzt werden kann, d.h. $d[N]/dt \approx 0$. Mit dieser Annahme wird die NO-Bildungsgeschwindigkeit zu:

$$\frac{d[NO]}{dt} = 2 k_1 [O][N_2]. \quad (2.75)$$

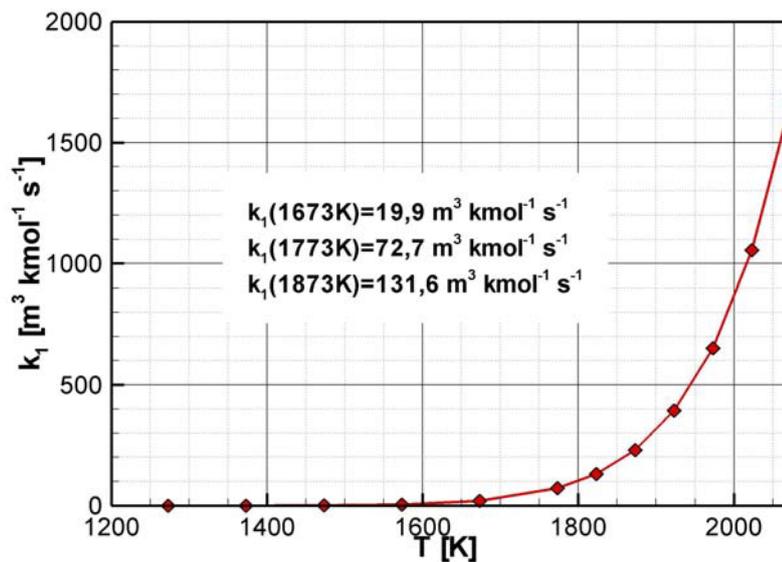


Abbildung 2.27: Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeitskoeffizienten der mit Gl. 2.70 gegebenen chemischen Reaktion (R1)

Neben der Quasistationaritätsannahme besteht noch eine zusätzliche Voraussetzung für die Gültigkeit dieser Formulierung: es dürfen keine zu fetten (brennstoffreichen) Bedingungen vorliegen, da sonst der Reburn-Mechanismus zum Tragen kommt [130] (siehe Brennstoff-NO-Mechanismus). Gl. 2.75 zeigt, dass die Konzentration der Sauerstoffatome neben dem oben diskutierten Geschwindigkeitskoeffizienten k_1 einen Einfluss auf die Stickstoffmonoxid-Produktionsrate hat. Als gut geeignet für die Berechnung der O-Konzentration erweist sich die Annahme eines partiellen Gleichgewichtes der relativ schnellen Reaktionen [130]:



Somit kann die Sauerstoffatom-Konzentration aus den für die Messung oder numerische Berechnung einfach zugänglichen Konzentrationen von Wasserstoff, Sauerstoff und Wasser ermittelt werden.

Prompt-NO-Bildung (Fenimore-NO)

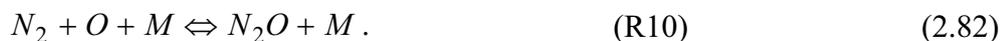
Im Unterschied zu dem bei mageren Bedingungen bevorzugten thermischen NO-Bildungsweg überwiegt der von Fenimore in Jahre 1971 vorgeschlagene Mechanismus bei leicht unterstöchiometrischen (fetten) Bedingungen. Hierbei wird der molekulare Stickstoff mit CH_i -Radikalen aufgebrochen:



Sowohl die Reaktionen R7-R9 als auch die konsekutiven Reaktionen der Zwischenprodukte (HCN , CN , NH_i) zu NO sind sehr schnell und resultieren nach diesem Mechanismus in nahezu „schlagartiger“ NO-Bildung [133], woraus sich auch der Name „Prompt NO“ ableitet. Die Aktivierungsenergie der Reaktion R8 (75 kJ mol^{-1}) ist viel kleiner als die der Reaktion R1 (318 kJ mol^{-1}) für die Bildung des thermischen NO [132]. Dementsprechend erfolgt die NO-Bildung nach diesem Mechanismus schon bei niedrigeren Temperaturen (um 1000 K) relativ zum thermischen Mechanismus. Im mageren Luftzahlbereich ist der Beitrag des über diesen Mechanismus gebildeten NO zur Gesamtemission sehr klein und kann vernachlässigt werden [132].

NO-Bildung nach Distickstoffoxid-Mechanismus

Dieser Mechanismus wurde zuerst von Wolfrum im Jahre 1972 postuliert. Hierbei wird aus der Reaktion zwischen molekularem Stickstoff und atomarem Sauerstoff Distickstoffoxid gebildet und durch ein Molekül M stabilisiert:



In einer Folgereaktion reagiert N_2O mit einem Sauerstoffatom zu NO:



Der NO-Bildungsmechanismus über N_2O ist nur dann signifikant, wenn magere Bedingungen die Bildung von CH_i -Radikalen inhibieren und damit den Fenimore-Mechanismus hemmen sowie gleichzeitig niedrige Temperaturen die Bildung von thermischem NO unterdrücken. Da dieser Bildungsweg eine Dreierstoß-Reaktion beinhaltet, wird er bei hohem Druck bevorzugt. Eine geringe Aktivierungsenergie, charakteristisch für den hier diskutierten Mechanismus, ermöglicht eine NO Bildung auch bei niederen Temperaturen.

NO-Bildung aus brennstoffgebundenem Stickstoff

Der Brennstoff-NO-Bildungsmechanismus stellt nur dann die Hauptquelle der gesamten Stickstoffoxidemissionen dar, wenn die Konzentration des chemisch gebundenen Stickstoffs im Brennstoff signifikant ist, wie zum Beispiel bei der Verbrennung von Kohle oder bei der Rückstandsverbrennung. Dieser komplizierte Mechanismus erfasst zahlreiche Elementarreaktionen; eine vereinfachte schematische

Darstellung ist in Abb. 2.28 ([134]) gegeben. Hierbei wird der brennstoffgebundene Stickstoff über schnelle Reaktionen in HCN umgewandelt und dann weiter zu NH_i -Radikalen konvertiert. Anschließend folgt die Oxidation dieser Spezies zu NO. Abb. 2.28 zeigt zusätzlich sowohl die NO-Bildungsmechanismen aus dem Luftstickstoff als auch den Reaktionspfad der Umwandlung von Stickstoffmonoxid zu Blausäure (NO-Recycle).

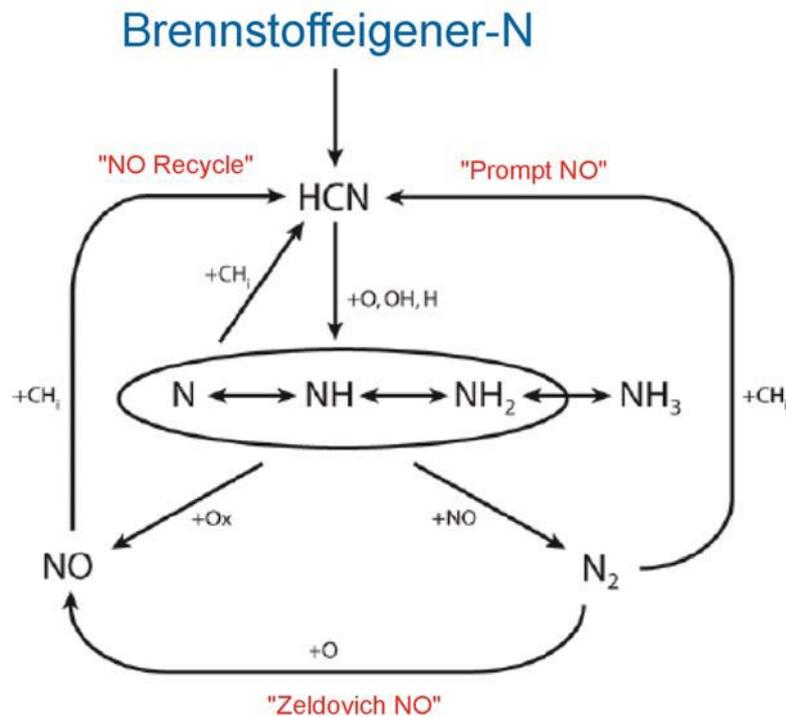


Abbildung 2.28: Umwandlung N-haltiger Komponenten bei der Verbrennung

2.2.2.2 Kohlenmonoxid-Bildung

Neben der schädlichen Wirkung auf die menschliche Gesundheit wird dem Kohlenmonoxid als Ozonpräkursor auch eine Rolle bei der Ausbildung des photochemischen Smogs zugeschrieben. Dementsprechend sind die CO-Emissionen Teil der politisch geforderten Emissionsreduktion. Kohlenmonoxid wird gebildet als Zwischenprodukt der Verbrennung fossiler Brennstoffe und dann weiter zu Kohlendioxid oxidiert:



Aufgrund ihrer höheren Geschwindigkeit wird die Reaktion R12 gegenüber der Kohlenmonoxid-Oxidation mit molekularem Sauerstoff bevorzugt. Die an der Reaktion R12 beteiligten Spezies werden durch folgende Reaktionen gebildet:



Da die Reaktion R12 langsamer als die Radikalbildungsreaktionen R13-R15 verläuft, stellt diese den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt dar. Dementsprechend lässt sich ein Ausdruck für die Kohlenmonoxid-Abbaurrate herleiten:

$$-\frac{d[CO]}{dt} = k [CO][H_2O]^{0,5} [O_2]^{0,25} \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right). \quad (2.88)$$

Nach Gl. 2.88 kann die Minderung der CO-Konzentration im Abgas der mit fossilen Brennstoffen betriebenen Feuerungssysteme durch folgende Primärmaßnahmen erfolgen: Erhöhung der Temperatur, Verlängerung der Verweilzeit und Erhöhung der Sauerstoffkonzentration (Luftzahlerhöhung). Durch eine bessere Vermischung von Brennstoff und Luft lassen sich lokale Temperatursenkungen vermeiden, in denen es sonst durch Abstoppen der Kettenfortpflanzungsreaktion (R12) zur Bildung von Kohlenmonoxid kommt.

2.2.3 Verbrennung in festen Schwämmen

Durch die ökonomisch motivierten Interessen - in Verbindung mit den ökologisch motivierten gesetzlichen Regelungen - entstehen immer anspruchsvollere Anforderungen an verbrennungstechnische Anlagen bezüglich ihrer Energieumwandlungseffizienz und Schadstoffemissionen. Daraus folgt die Tendenz der modernen Verbrennungssysteme zu kompakteren Bauweisen mit sehr hohen thermischen Leistungen und mit gleichzeitig minimalen Schadstoffemissionen. Eines der in letzter Zeit entwickelten Konzepte zur Erfüllung dieser Erfordernisse ist die im Fokus der vorliegenden Arbeit stehende Porenbrennertechnik. In diesem Abschnitt werden die Grundlagen des Porenbrennerkonzepts dargestellt und eine Literaturübersicht über die auf diesem Gebiet bereits durchgeführten Studien gegeben.

Vormischflammen verfügen über ein hohes Potenzial zur Minderung der Schadstoffemissionen, sind aber mit starken Flammeninstabilitätsrisiken verbunden. Um die Vorteile der Vormischverbrennung ausnutzen zu können, ist es erforderlich, eine

hohe Stabilität solcher Flammen zu gewährleisten. Im Jahre 1971 brachte Weinberg [135] das anhand einer theoretischen Analyse erarbeitete Konzept des so genannten „Überschussenthalpie“-Brenners ein. In einem solchen Brenner sollte nur die Wärme aus dem Verbrennungsprozess zurückgeführt werden ohne die Verdünnung der Edukte mit den heißen Abgasen. Diese „geliehene“ Wärme führt zu höheren Verbrennungstemperaturen und somit zu höheren Umsatzraten. Weinberg [135] schlug damals die Ausführung des Brenners als Gegenstromwärmeaustauscher vor, in dem die Edukte durch die heißen Verbrennungsprodukte ohne die Mischung dieser zweier Ströme und ohne externe Wärmequellen zusätzlich erwärmt werden. Im Jahre 1979 wurde von Takeno und Sato [136] die Erzeugung der „Überschussenthalpie“-Vormischflammen durch das Einsetzen eines inerten porösen festen Körpers mit hoher Wärmeleitfähigkeit in der Flammenzone vorgeschlagen. In den ersten experimentellen Versuchen wurde die Flamme an der Oberfläche eines Eisenblocks mit parallelen Kanälen stabilisiert [137] oder innerhalb bzw. oberhalb eines Rohrbündels aus Keramik [138]. Mit der Entwicklung der neuartigen porösen keramischen Materialien und Strukturen wurden in der letzter Zeit Versuche gemacht, den Verbrennungsprozess mit Überschuss von Enthalpie innerhalb eines mit Schüttungen, Wabenstrukturen oder monolithischen Schwämmen ausgefüllten Volumens auszuführen.

In einem Porenbrenner wird die Flammenstabilisierung innerhalb eines dreidimensionalen porösen Körpers gewährleistet, welcher um eine Größenordnung bessere Wärmetransporteigenschaften aufweist als das brennbare Gasgemisch allein [2]. Somit wird eine Wärmerückführung ohne Verdünnung des unverbrannten Brennstoffgasgemisches erzielt, die zur Erhöhung der Brenngeschwindigkeit führt. Um das zugrunde liegende Prinzip der Flammenstabilisierung in einem Porenbrenner zu demonstrieren, werden die anhand einer eindimensionalen numerischen Simulation der Verbrennung in PIM gewonnenen Temperatur- und Konzentrationsprofile einiger Spezies in Abb. 2.29 dargestellt.

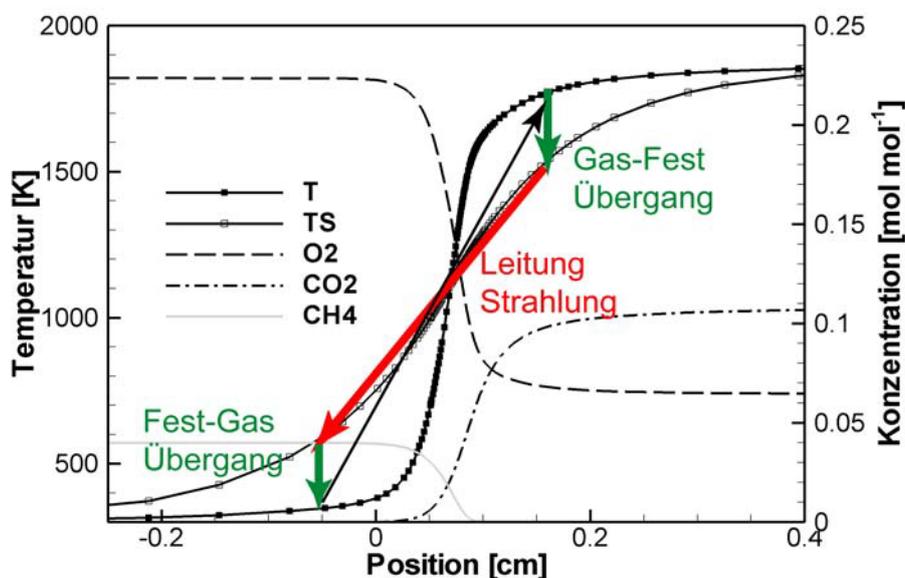


Abbildung 2.29: Temperatur- und Konzentrationsprofile bei der Verbrennung in PIM ($\lambda=1,3$; $T_{VW}=300K$)

Analog zu Abb. 2.24 kann man in Abb. 2.29 zwischen einer Reaktions- und einer Vorwärmzone unterscheiden. In der Reaktionszone wird die Verbrennungswärme freigesetzt mit dem Ergebnis, dass die Gastemperatur höher ist als die des Schwammes. Die vorliegende Temperaturdifferenz resultiert aufgrund der großen inneren Oberfläche des Porenkörpers in einem sehr effektiven Wärmeübergang vom Gas zum Schwamm. Somit steigt die Temperatur des Schwammes in der Reaktionszone höher als in der Vorwärmzone. Aufgrund des existierenden Temperaturgradienten erfolgt ein intensiver Wärmestrom innerhalb der festen Phase aus dem Bereich der Reaktionszone entgegen der Strömungsrichtung mittels Strahlung und Wärmeleitung. Dieser Wärmestrom ergibt wiederum eine höhere Schwammtemperatur in der Vorwärmzone im Vergleich zur Gastemperatur, und die Wärme wird vom Schwamm zum Gas übertragen. Diese stromauf wirkende innere Wärmezirkulation bewirkt eine Vorwärmung des Frischgasgemisches und resultiert in einer lokalen Erhöhung der Verbrennungstemperatur über den Gleichgewichtswert hinaus (s. Kapitel 4.2), was zu einer Erhöhung der Flammgeschwindigkeit und deswegen zu einer Erweiterung des Stabilitätsbereiches im Vergleich zur laminaren Flamme führt. Die Schadstoffemissionen hängen vom Temperaturfeld und der Verweilzeit der Fluidelemente in der Reaktionszone ab. Die sehr schnelle Wärmeabfuhr aus der Reaktionszone und deren Nachlauf bewirken eine geringere NO-Bildungsrate, ohne den CO Abbau entscheidend zu verschlechtern.

Durch die beschriebenen Prozesse des Wärmetransports innerhalb eines PIM's und deren Auswirkung auf die Flammenstabilität wird deutlich, dass die Kenntnis der Wärmetransporteigenschaften des porösen Materials und deren Einfluss auf den Verbrennungsvorgang nach wie vor eine Schlüsselposition in der Forschung einnehmen. Die erwähnten Wärmetransporteigenschaften hängen von der Art der Struktur (PPI, Porosität, spezifische Oberfläche) und dem Werkstoff ab und können experimentell und/oder theoretisch untersucht werden.

2.2.3.1 Experimentelle Untersuchungen der Verbrennung in festen Schwämmen

Die experimentelle Untersuchung der Verbrennung im PIM ist durch den begrenzten optischen und mechanischen Zugang wesentlich erschwert. Der Grund könnte dem Mangel an experimentellen Studien der Verbrennung in keramischen monolithischen Schwammstrukturen zugeschrieben werden. In diesem Kapitel wird eine Literaturliste der veröffentlichten experimentellen Studien der Verbrennung in festen Schwämmen gegeben.

Howell und Mitarbeiter [139, 140, 141] wählten einen Schwamm aus PSZ („partially stabilized zirconia“) für den Einsatz im Porenbrenner aus, sowohl aufgrund seiner hohen Porosität und dem damit verbundenen niederen Druckverlust, als auch aufgrund seiner hohen spezifischen Oberfläche. Die detektierten Brenngeschwindigkeiten im PSZ-Porenbrenner waren deutlich höher als die für die laminare Gasflamme. Üblicherweise wird vor dem Porenkörper, der von der Verbrennungszone erfasst wird, ein zweiter feinporiger PIM vorgeschaltet, um den Flammenrückschlag in das Frischgasgemisch zu verhindern (Abb. 2.30). In [141] wurde als Flammensperre ein 65 PPI Schwamm aus PSZ eingesetzt, wobei die Porendichte des PSZ-Schwammes in der Verbrennungszone variiert wurde: 10 PPI, 30 PPI, 45 PPI. Der Verbrennungsfortschritt wird üblicherweise durch die Aufnahme von Temperaturprofilen innerhalb der Verbrennungszone senkrecht zur Flammenfront registriert. Da es technisch sehr schwierig ist, einen Temperaturverlauf innerhalb eines festen porösen keramischen Körpers zu messen, wurden die Thermoelemente für die Temperaturmessung bei vergleichbaren Untersuchungen oft nur am Rand des Porenkörpers eingesetzt und bei der Interpretation der Ergebnisse ein vernachlässigbarer radialer Temperaturgradient angenommen. Diese Methode wurde auch in der hier diskutierten Studie ([141]) angewandt. Die Messergebnisse zeigten, dass es mit Reduzierung der Porengröße zu einer Minderung der maximalen Brenngeschwindigkeit und damit der oberen Stabilitätsgrenze kommt. Der Extinktionskoeffizient vergrößert sich mit der Erhöhung der PPI-Zahl und führt im Falle des PSZ-Porenbrenners zu einer Verschlechterung der inneren Wärmereizirkulation innerhalb des PIM's. Ein ähnlicher zylindrischer Zwei-Sektion-Porenbrenner für Methanverbrennung (Abb. 2.30) wurde in [142, 143] untersucht. In die Verbrennungszone wurde ein 10 PPI-Schwamm eingesetzt, wobei als Flammensperre ein 60 PPI-Schwamm diente. Der Werkstoff, aus welchem die Schwämme hergestellt waren, wurde variiert, so dass ein YZA- (Yttria-stabilisiertes Zirconia/Alumina-Komposita) und ein ZM-Brenner (Zirconia-schlagzäh modifizierter Mullit) untersucht wurden. Wieder wurde das axiale Temperaturprofil im Brenner nur am Brennerrand (nicht im Schwamm) aufgenommen. Die experimentellen Stabilitätsuntersuchungen zeigten, dass im Porenbrenner eine höhere Brenngeschwindigkeit im Vergleich zur laminaren Gasflamme erreicht wird, und somit ein breiter Betriebsbereich gewährleistet werden kann, wobei der YZA-Brenner einen besseren Stabilisierungseffekt aufwies als man im ZM-Brenner detektieren konnte. Weiter wurde der gleiche YZA-Brenner in [143] für Propan- und Methanverbrennung eingesetzt. Im untersuchten Luftzahlbereich waren beide - untere und obere Stabilitätsgrenzen der Methanflamme - niedriger als die entsprechenden Grenzen der Propanflamme. Es wurden sehr geringe UHC-, NO_x- und CO-Konzentrationen beobachtet.

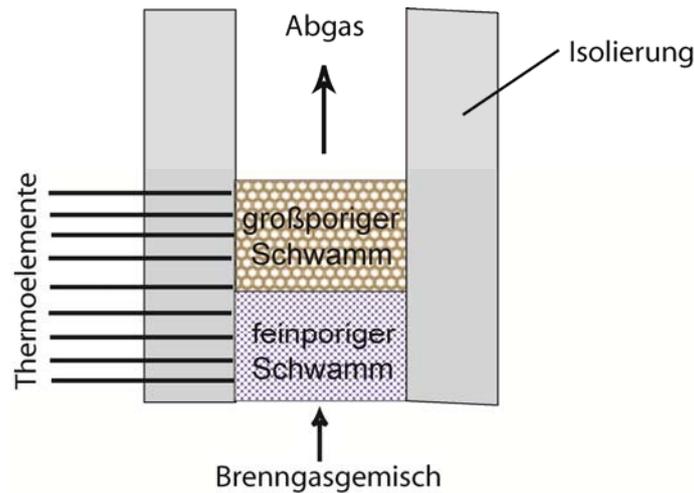


Abbildung 2.30: Schematische Darstellung eines typischen Zwei-Sektion-Porenbrenners

Im Gegensatz zur Verbrennung ohne Porenkörper ist es bei der Verbrennung in einem porösen Medium sehr schwierig, eine definierte Stabilitätsgrenze anzugeben, da die Flamme bei einer Erhöhung des Durchsatzes nicht schlagartig erlischt, sondern der Prozess des Abblasens quasi stufenförmig verläuft. Um diese Schwierigkeit zu überwinden, wurde in [13] eine modifizierte Ausführung des Porenbrenners mit einer konusförmigen Reaktionszone aus SiSiC ausgelegt zur Bestimmung der Brenngeschwindigkeit bei stationärer Verbrennung (siehe Abb. 2.31). Da sich die Strömungsgeschwindigkeit in einem Konus entlang der Anströmrichtung aufgrund des sich vergrößernden Querschnitts kontinuierlich verringert, bewegt sich eine Flamme in einem Konus so lange stromaufwärts, bis Gasgeschwindigkeit und Brenngeschwindigkeit im Gleichgewicht sind. Demzufolge kann man die Brenngeschwindigkeit innerhalb des Schwammes durch die Ermittlung der Flammenposition bestimmen.

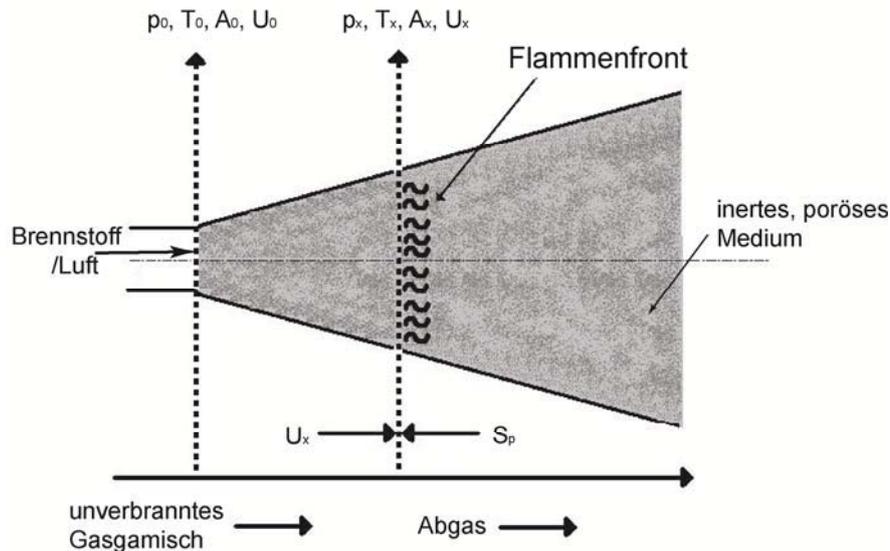


Abbildung 2.31: Schematische Darstellung des Messprinzips zur Bestimmung der Brenngeschwindigkeit in einem konusförmigen Porenbrenner [13]

Bei den in [13] durchgeführten Stabilitätsuntersuchungen wurde jedoch die Brenngeschwindigkeit basierend auf dem Gaszustand im Stabilitätspunkt ermittelt und nicht basierend auf dem Zustand des unverbrannten Gasmisches, wie es gemäß der Definition vorgesehen ist. Dementsprechend führt ein solches Verfahren zu einer Überschätzung der Brenngeschwindigkeit.

Die Brenngeschwindigkeit in einem Porenbrenner ergibt sich aus dem Gleichgewicht zwischen der Wärmefreisetzung, der Wärmerezirkulation und den Wärmeverlusten. Wie schon diskutiert, können sich unter bestimmten Bedingungen Überschussenthalpie-Flammen, auch superadiabatische Flammen genannt, ergeben. Eine Veränderung des Gleichgewichts, so dass die Wärmeverluste höher werden bzw. die Wärmerezirkulation geringer wird, kann zur Bildung der so genannten subadiabatischen Flammen führen. In dem Fall können die Wärmeverluste aus dem System in brauchbare Energie als Strahlungswärme oder Abgasenthalpie wiedergewonnen werden. [144] zeigten, dass man einen Zwei-Sektion-Porenbrenner mit FeCrAlY-Metallschwamm abhängig von der Luftzahl in beiden, superadiabatischen und subadiabatischen Regimen betreiben kann.

Al-Hamamre et al. [145] untersuchten die Verbrennung von niederkalorischem Synthesegas und Deponiegas innerhalb von zwei unterschiedlichen porösen Strukturen - zum einen Aluminiumoxid-Lamellen, zum anderen SiSiC-Schwämme. Hierbei konnte der Porenbrenner mit dem SiSiC-Schwamm eine höhere Erweiterung der mageren Flammenstabilitätsgrenze als die Brennerkonfiguration mit Alumina-Lamellen für beide untersuchten Brennstoffe gewährleisten.

Von einer Ausführung des Porenbrenners mit drei Sektionen wurde in [146] berichtet. Hierbei wurden, neben der feinporigen Flammensperre (Zirconia-Schwamm), zwei unterschiedliche Porenkörper in der Verbrennungszone eingesetzt: der grobporige ZrO_2 -Schwamm und der Alumina-Mischer. Es wurde allerdings von keinem Vorteil einer solchen Ausführung berichtet.

Die hierbei vorgestellten Studien deuten darauf hin, dass die Brennerperformanz stark von der Wahl des Porenkörpers abhängig ist. Es besteht großer Bedarf an zukünftigen Untersuchungen auf diesem Gebiet wie auch in einer ausführlicher Literaturübersicht von Wood et al. [147] festgestellt wurde.

Einige anwendungsorientierte Untersuchungen unterschiedlicher Porenbrennerausführungen für den Einsatz in zahlreichen verschiedenen Anwendungsbereichen wurden veröffentlicht. Ein rechteckiger und ein zylindrischer Porenbrenner mit integriertem Wärmeaustauscher in sehr kompakter Bauweise für Haushalt- und Industrieanwendung wurden in [148, 149] vorgestellt. Sie zeichneten sich durch eine hohe Effizienz, hohe Leistungsdichte, einen breiten Leistungsmodulationsbereich und geringe Schadstoffemissionen aus. Mößbauer et al. [150] erweiterten das so genannte „Zero Emission Engine (ZEE)“-Konzept, indem sie als Wärmequelle für den Prozess einen Porenbrenner einsetzten. Hierbei wurden ein ringförmiger Porenbrenner für Einzelkolben-ZEE und ein kubischer Brenner für Dreikolben-ZEE, für beide, gasförmige und flüssige Brennstoffe (mit vorgeschalteten Verdampfungsphase), ausgelegt. Da die konventionellen Vormischbrenner für industrielle Anwendung eine zu geringe Leistungsmodulation (1:2,5) aufweisen, wurde in [149] ein Konzept vorgeschlagen, das die Vorteile der geringen Schadstoffemissionen der Vormischflammen zusammen mit ausgezeichneter Leistungsmodulation (1:50) sichert. Dieses Konzept basiert auf einem Ringspaltporenbrenner, kombiniert mit einem konventionellen Vormischbrenner. Eine Ausführung des Porenbrenners für die Anwendung als verfahrenstechnischer Trockner mit sehr kompaktem Design wurde von Mößbauer et al. vorgestellt [149]. Zur Minimierung des Einflusses der Verbrennung von flüssigen Brennstoffen auf die Umgebung wurde ein BIOFLAM-Boiler, basierend auf dem Porenbrennerkonzept, ausgelegt [151]. Dieser Haushaltsbrenner zeichnet sich auch durch geringe Schadstoffemissionen aus und kann sowohl mit Heizöl als auch mit Biobrennstoffen betrieben werden [151]. Jedoch ist hier eine vor der Verbrennungszone geschaltete Verdampfungsphase des flüssigen Brennstoffes erforderlich. Die durch ökologische Anliegen motivierte Studie an gestufter Methan/Luft-Verbrennung im Porenbrenner wurde in [152] veröffentlicht. Der hier untersuchte Brenner beinhaltet einen sehr dünnen Porenkörper und ermöglicht kontinuierlich gestufte Eindüsung von Methan oder Luft entlang der Brennkammer. Die gestufte Verbrennung in porösen Medien führte zu einer Verringerung der NO_x -Emissionen um ca. 30% im Vergleich zum gleichen Porenbrenner ohne gestufte Verbrennung. Als potentielle Anwendung dieses Brenners wurden Haushaltsboiler und Antriebssysteme genannt. In [152, 153] wurde ein Strahlungsbrenner mit kontinuierlich gestufter Methan/Sauerstoff-Verbrennung im Ringspaltporenbrenner ausgeführt. Die Verbrennung mit reinem Sauerstoff als Oxidationsmittel ist durch sehr hohe Verbrennungs-

temperaturen ($>2800^{\circ}\text{C}$) gekennzeichnet. Die ausreichend niedrige Temperatur für das Einsetzen von Porenkörpern ($<1800^{\circ}\text{C}$) wurde durch die Ausführung der Verbrennungszone in einer sehr dünnen Porenkörperschicht gestaltet. Somit ist das Verhältnis zwischen der Wandoberfläche und dem für den Verbrennungsprozess freien Volumen relativ groß, ermöglicht relativ hohe relative Wärmeverluste und eine hohe Absenkung der Verbrennungstemperatur. Ein mehrstofffähiger Porenbrenner für die Anwendung in kohlenwasserstoffbetriebenen Brennstoffzellensystemen mit Reformern wurde in [13] entwickelt und beinhaltet einen SiSiC-Schwamm in der Verbrennungszone. Damit wurde der Nutzen von Vorteilen der Porenbrennertechnik gewährleistet – wie z.B. schadstoffarme Umsetzung der verschiedenen in Brennstoffzellensystemen auftretenden Brennstoffe und hohe Flexibilität bezüglich des Luftzahl- und Leistungsbereichs.

Die zuvor beschriebenen experimentellen Untersuchungen der Verbrennung in festen Schwämmen erfassen einen relativ breiten Anwendungsbereich und berichten von hoher Flammenstabilität und niedrigen Schadstoffemissionen solcher Brenner. Jedoch sind die Daten bezüglich der Brenngeschwindigkeit sehr häufig nicht vorhanden. Diese bilden aber eine Voraussetzung zur Auslegung und Dimensionierung von Schwämmen für den Einsatz in Porenbrennern.

2.2.3.2 Numerische Simulationen der Verbrennung in festen Schwämmen

Die Modellierung des Verbrennungsprozesses innerhalb eines porösen Mediums ist durchaus komplex, da sie eine gekoppelte Lösung des Energietransportes und der chemischen Kinetik lokal im Medium erfordert. Die Energiegleichung für die feste Phase ist oft getrennt von der Energiegleichung für das strömende Fluid geschrieben. Hierbei müssen die Terme für Wärmeleitung, Strahlung und Wärmeübergang in der Energiegleichung für die feste Phase erfasst werden. Darüber hinaus ist die Berücksichtigung von Wärmeleitung und Wärmeübergang zwischen zwei Phasen und den Termen der chemischen Wärmefreisetzung in der Energiegleichung für das Fluid notwendig. Weiter sind die thermophysikalischen Parameter des porösen Mediums zur Beschreibung des Energietransportes im Festkörper erforderlich. Eine experimentelle Bestimmung der Wärmetransporteigenschaften keramischer Schwämme ist stark mit der Schwierigkeit verknüpft, die Wärmeleitung und die Strahlung voneinander unabhängig zu messen. Aus diesem Grund wurden oft die Wärmetransporteigenschaften in Form einer Ruhewärmeleitfähigkeit bzw. einer effektiven Wärmeleitfähigkeit gegeben (siehe Kapitel 2.1.3). Ferner weichen die ermittelten Schwammparameter selbst für die Schwämme vom gleichen Hersteller voneinander in einem ziemlich breiten Bereich ab. Infolge der hier aufgezählten Unsicherheiten werden die für die Transportvorgänge in einem Schwamm charakteristischen Parameter oft

durch unterschiedliche analytische oder empirische Modelle beschrieben, was wiederum die Fähigkeit des Modells, einen Verbrennungsprozess in PIM wiederzugeben, beeinflusst. Im Folgenden wird ein Überblick über die in der Literatur vorhandenen numerischen Modelle der Verbrennung in festen Schwämmen gegeben.

Hsu et al. [141] veröffentlichten ein eindimensionales Modell der Verbrennung in einem Zwei-Sektionen-Porenbrenner mit beiden, Vorwärm- und Reaktionszone, aus PSZ-Schwämmen unterschiedlicher Porendichte. Das Modell erfasst zwei separate Energiegleichungen für das Gas und für den Schwamm, wobei die Strahlung im Festkörper mittels einer eindimensionalen integralen Formulierung der Strahlungstransportgleichung berechnet wurde. Das Modell von Hsu et al. zeigte relativ gute Übereinstimmung mit den in analogen Experimenten gemessenen Brenngeschwindigkeiten. Die numerische Untersuchung des Verbrennungsvorganges bei unterschiedlichen Brennstoffzahlen (Kehrwert der Luftzahl) sagte höhere Verbrennungstemperaturen innerhalb des bestimmten Brennstoffzahlbereichs voraus, relativ zu den entsprechenden adiabaten Verbrennungstemperaturen. Dieses Phänomen ist von angenommenen Schwammparametern abhängig, ergibt sich aus der intensiven Wärmezirkulation durch den Schwamm und gilt als der Hauptgrund für die erhöhten Brenngeschwindigkeiten im Porenbrenner. Jedoch waren die numerisch bestimmten Brenngeschwindigkeiten für die Brennstoffzahlen außerhalb des zuvor diskutierten Bereichs immer noch viel höher als die entsprechenden Brenngeschwindigkeiten der Gasflammen, obwohl die Verbrennungstemperaturen niedriger als die in den Gasflammen waren. Als eine Erklärung für dieses Verhalten nennen die Autoren die mit Erhöhung der Brennstoffzahl verbundene Verarmung an Sauerstoffradikale in der Vorwärmzone, welche eine Absenkung der Verbrennungstemperatur zur Folge hat. Jedoch ist die Gesamtmenge der erzeugten Radikale immer noch viel höher als in der Gasflamme, so dass die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner viel höher bleibt. Darüber hinaus wurde der Einfluss der Strahlung auf die Flammenstabilisierung untersucht. Es wird gezeigt, dass zwei Beiträge von Wärmeübertragung durch die Strahlung innerhalb der porösen Matrix eine entscheidende Rolle spielen:

- der Beitrag der Strahlung innerhalb des grobporigen PIM's zur Vorwärmung des zuströmenden Frischgemisches
- der durch den großen Extinktionskoeffizienten bedingte Beitrag der Strahlungsreflektion vom feinporigen zum grobporigen PIM .

Diese Studie von Hsu et al. [141] ist eines der wenigen numerischen Modelle, das eine relativ gute Vorhersage der Brenngeschwindigkeit im untersuchten PSZ-Porenbrenner bietet. Jedoch zeichnet sich ein PSZ-Schwamm mit einer sehr geringen Wärmeleitfähigkeit und einem relativ niedrigen Emissionsgrad aus und leistet relativ geringe (bis zu fünfmal) Erhöhung der Brenngeschwindigkeit. Das gleiche numerische Modell wurde in einer weiteren Studie von Hsu et al. [154] verwendet, um den Einfluss verschiedener Schwammparameter wie den Absorptionskoeffizienten, die Wärmeleitfähigkeit und den konvektiven Wärmeübergang zwischen zwei Phasen auf

die Flammenstabilität zu untersuchen. Die Variation der untersuchten Wärmetransporteigenschaften zeigte, dass eine Erhöhung sowohl des Wärmeüberganges als auch der Festkörperwärmeleitung einen höheren Vorwärmeeffekt des Schwammes und somit höhere Brenngeschwindigkeit zur Folge hat. Diese Erhöhung des Wärmeübergangsterms kann durch eine Erhöhung der Porendichte bewirkt werden. Jedoch ist die Erhöhung der Porendichte mit der Steigerung des Absorptionskoeffizienten verbunden und hat eine negative Auswirkung auf die Flammenstabilität.

Ein Porenbrenner mit 10 PPI Alumina-Schwamm in der Verbrennungszone und 66 PPI Alumina-Schwamm in der Vorwärmzone wurde im numerischen Modell von Zhou und Pereira [103] eindimensional betrachtet. Der Code beinhaltet zwei Energiegleichungen, einmal für das Gas und einmal für den Festkörper. Die Strahlung im Schwamm wurde mittels eindimensionaler diskreter Ordinate-Methode modelliert, wobei die Reaktionskinetik mittels der Methanoxidation nach Glarborg et al. [155] mit 27 Spezies und 73 Elementarreaktionen beschrieben wurde. Die numerischen Simulationen wurden mit dem Ziel durchgeführt, die Temperaturprofile und die Bildung von NO und CO zu untersuchen. Das Modell wurde validiert mit experimentellen Daten von [156] und zeigte befriedigende Übereinstimmung bezüglich der Temperaturprofile und Schadstoffemissionen. Jedoch wurden keine Angaben bezüglich der berechneten Brenngeschwindigkeiten und der Übereinstimmung dieser mit den experimentellen Daten gemacht. Dennoch wurden hier der Einfluss der Wärmeleitfähigkeit der Festphase und der Einfluss der Strahlung auf die Temperaturprofile und die Schadstoffbildung im Porenbrenner untersucht. Eine Reduzierung der Wärmeleitfähigkeit der festen Phase beeinflusst beide, Gas- und Feststofftemperaturprofil. Diese Parameteränderung führt zur Abnahme der Feststofftemperatur in der Vorwärmzone und zum steileren Temperaturgradienten in der festen Phase an Stelle der Flammenfront. Deshalb nimmt sowohl die Gastemperatur in der Vorwärmzone als auch das Maximum der Gastemperatur in der Flamme ab. Somit wird die Vorwärmzone schmaler und der Temperaturgradient in der Gasphase in diesem Bereich steiler. Aufgrund der angedeuteten Abnahme der Flammentemperatur mit Reduzierung der Schwammwärmeleitfähigkeit sinken die NO-Emissionen. Obwohl es sich in [103] zeigte, dass man die NO-Emissionen durch Anwendung der Schwämme mit geringer Wärmeleitfähigkeit absenken kann, würde dies einen starken Einfluss auf die Brenngeschwindigkeit ausüben und entsprechend in einer schlechteren Flammenstabilität resultieren. Ähnlich wie in der zuvor präsentierten Studie von Hsu et al. [141] wurden in den Berechnungen von Zhou und Pereira [103] zwei Beiträge der Strahlung innerhalb der porösen Matrix detektiert: Wärmeübertragung durch Strahlung im grobporigen Schwamm zur Vorwärmung des Frischgasgemisches und der Strahlungsreflektion im feinporigen Schwamm.

Eine Studie bezüglich des Einflusses der verwendeten Reaktionsmechanismen auf die numerische Simulation der Verbrennung im Schwamm wurde von Zhou und Pereira [104] veröffentlicht. Hierbei wurde Methan/Luft-Verbrennung in einem 10 PPI-Schwamm aus PSZ untersucht, wobei vier diverse Reaktionsmechanismen eingesetzt wurden:

1. Detaillierter Mechanismus, *DM* (49 Spezies, 227 Reaktionen)
2. Skelettmechanismus, *SM* nach Glarborg et al. [155] (27 Spezies, 73 Reaktionen)
3. 4-Schritt reduzierter Mechanismus, *4RM* (9 Spezies)
4. 1-Schritt globaler Mechanismus, *1GM*.

Der 4RM-Mechanismus wies in etwa die gleiche Genauigkeit auf wie der DM-Mechanismus bezüglich Temperatur- und Konzentrationsprofilen der Hauptspezies, wobei der 1GM-Mechanismus in einem höheren Temperaturmaximum aufgrund der fehlenden Dissoziation und infolge dessen in einer höheren Reaktionsrate resultiert. Die mit 4RM-, SM- und DM-Mechanismus berechneten CO-Emissionen zeigten gute Übereinstimmung mit den entsprechenden experimentellen Daten. Jedoch waren die NO-Emissionen für die Mechanismen SM und 4RM überschätzt. Die mit dem 1GM-Mechanismus ermittelte Brenngeschwindigkeit war überschätzt, wobei die anderen drei Reaktionsmechanismen 4RM, SM, DM eine gute Hervorsage der Brenngeschwindigkeit im Schwamm lieferten. Die mit allen untersuchten Reaktionsmechanismen ermittelten Stabilitätsdiagramme sind in Abb. 2.32 als Beziehung zwischen Brenngeschwindigkeit und Luftzahl dargestellt und mit den Daten sowohl aus dem numerischen Modell von Hsu et al. [157] als auch aus den Experimenten von Chaffin et al. [140] verglichen. Daraus wird ersichtlich, dass keines der numerischen Modelle die tatsächliche Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner widerspiegelt. Die experimentell ermittelte Stabilitätskurve ist bedeutend steiler als die entsprechenden modellierten Stabilitätsgrenzen. Der Grund für die starken Abweichungen der numerischen Ergebnisse im Vergleich zu den experimentellen bezüglich der Brenngeschwindigkeit liegt in nur begrenztem Verständnis der thermischen Strahlungs- und strömungsmechanischen Vorgänge im Schwamm.

Zweidimensionale numerische Berechnungen der Methan/Luft Verbrennung in einem Porenbrenner mit integriertem Wärmeaustauscher wurden in [158] vorgeführt. Der hier untersuchte Brenner ist in folgende Zonen unterteilt: Vorwärmzone mit einer Aluminiumoxid-Kugelschüttung ($d_p=5\text{mm}$); Verbrennungszone aus 10 PPI SiC-Schwamm; Wärmeaustauschzone mit einer Aluminiumoxid-Kugelschüttung ($d_p=3\text{mm}$).

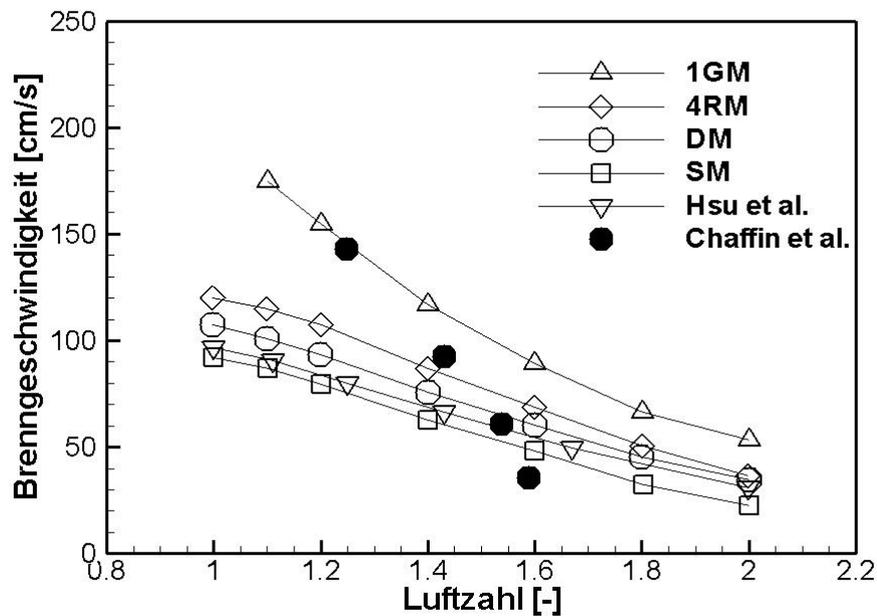


Abbildung 2.32: Die in [104] mit diversen Reaktionsmechanismen berechneten Stabilitätsdiagramme im Vergleich mit den numerischen Daten von Hsu et al. [157] und experimentellen Daten von Chaffin et al. [140]

Das Modell wurde durch den Vergleich mit den Temperaturmessdaten aus analogen Experimenten [159] validiert. Die berechneten NO- bzw. CO-Emissionen waren höher bzw. geringer als es tatsächlich in den entsprechenden Experimenten detektiert wurde. Weiterhin wurde in dieser Studie die Auswirkung der Luftzahl, der Wärmeleitfähigkeit des Feststoffes, des Wärmeübergangskoeffizienten und der Strahlungseigenschaften untersucht. Die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit des Feststoffes resultiert in einem intensiveren Wärmestrom aus der heißen Reaktionszone, was wiederum in einer Absenkung des Temperaturmaximums und in einer Minderung der NO-Emissionen resultiert. Eine Erhöhung des Wärmeübergangskoeffizienten führt zum intensiveren Wärmeaustausch zwischen zwei Phasen und somit zur Minderung der Temperaturdifferenz zwischen Gas und Feststoff. Es wird mehr Wärme vom Gas zum Schwamm abgegeben, was eine Absenkung des Gastemperaturmaximums und der NO-Emissionen zur Folge hat. Im Rahmen der hier durchgeführten Parameteranalyse wurde der Extinktionskoeffizient variiert - mit nur geringfügiger Auswirkung auf die Temperaturprofile und NO-Emissionen als Ergebnis. Setzt man den Streusalbedo auf eins, d.h. es findet keine Absorption statt, wandert die Flamme stromabwärts, das Temperaturmaximum erhöht sich und infolgedessen steigt die NO-Emission. In dieser Veröffentlichung sind die Ergebnisse dargestellt, welche zum Verständnis der komplizierten Wechselwirkungen zwischen der Flamme und diversen Wärmetransportvorgängen beitragen, jedoch sind die Angaben bezüglich der Brenngeschwindigkeit hier nicht aufgeführt.

Eine weitergehende numerische Untersuchung des gleichen Brenners wie in [158] wurde von Malico et al. in [160] veröffentlicht, wo eine Sensitivitätsstudie durchgeführt wurde mit dem Ziel, die Wichtigkeit der Strahlung und Strahlungseigenschaften für die Verbrennung im PIM zu bestimmen. Die Variation des Extinktionskoeffizienten und der Streualbedo beeinflusst bezeichnenderweise die Temperaturprofile in der Postflammenregion, besonders im Fall der Erhöhung der Streualbedo. Ein Vergleich der Temperaturprofile, ermittelt aus den numerischen Berechnungen mit und ohne Berücksichtigung der Strahlung bzw. aus den Experimenten, ist in Abb. 2.33 gegeben. Die größten Temperaturdifferenzen liegen im Postflammenbereich vor. Nur geringfügige Abweichung ist in der Vorwärmzone zu beobachten, dennoch sind die maximalen Temperaturen in der Flammenfront fast identisch.

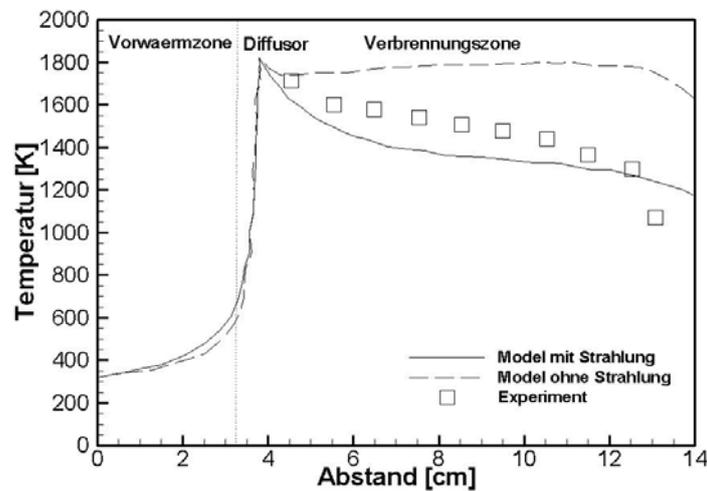


Abbildung 2.33: Die mit bzw. ohne Strahlung berechnete Temperaturprofile im Vergleich zu den experimentellen Daten [160]

Obwohl Gas- und Feststoffphase in einem Porenbrenner unterschiedliche Temperaturen aufweisen, wie in zuvor dargestellten Arbeiten demonstriert wurde, wird das Fluid-Feststoffsystem oft als pseudohomogenes Medium betrachtet. Ein solches numerisches Modell wurde von Brenner et al. [146] für die Bestimmung der zweidimensionalen Temperatur- und Konzentrationsprofilen in einem Drei-Sektion-Porenbrenner vorgeschlagen. Der untersuchte Brenner beinhaltete einen 45 PPI ZrO_2 -Schwamm als Flammensperre und zwei unterschiedliche Porenkörper in der Verbrennungszone: einen 20PPI ZrO_2 -Schwamm und eine poröse Matrix in Form eines statischen Mischers aus Al_2O_3 . Aufgrund der pseudohomogenen Betrachtung wurde in dieser Berechnung nur eine Energiegleichung gelöst, wobei die Wärmetransportvorgänge mittels effektiver Wärmeleitfähigkeit beschrieben wurden (siehe Kapitel 2.1.3.1, Gl. 2.30). Die berechneten zweidimensionalen Temperaturprofile für verschiedene Luftzahlen und Leistungen zeigten, dass die Verbrennung innerhalb einer porösen Matrix eine sehr starke Abhängigkeit von der thermischen Leistung

aufweist. Erhöhung der thermischen Leistung bei der gleichen Luftzahl bewirkt auf der einen Seite die Wanderung der Zone maximaler Temperatur stromabwärts und auf der anderen Seite die globale Erhöhung des Temperaturniveaus. Die zwei entgegengesetzten Effekte haben eine annähernd leistungsunabhängige Rate der Wärmeabfuhr aus der Verbrennungszone in Richtung der Brennerwand zur Folge. Dementsprechend erhöht sich das Temperaturmaximum mit steigender thermischer Leistung. Das Modell ist als geeignet zur Voraussage der globalen Tendenzen wie die Effekte der Luftzahl, der Leistung und der Materialeigenschaften, anerkannt.

Eine eindimensionale numerische Untersuchung der Flammenstabilität in einem Zwei-Sektion-Porenbrenner wurde von Barra et al. [105] durchgeführt. Das Modell berücksichtigt Gas- und Festkörperwärmeleitung, Strahlung des Feststoffes, Wärmeübergang zwischen zwei Phasen, Diffusion und Dispersion von Spezies und detaillierten Reaktionsmechanismus. Der Brenner besteht aus einem feinporigen PSZ-Schwamm mit 65 PPI und einem grobporigen PSZ-Schwamm mit 10 PPI. Der Einfluss der diversen Schwammparameter auf die Flammenstabilität wurde untersucht und es wurde gezeigt, dass die Matrixeigenschaften eine starke Auswirkung auf den Verbrennungsprozess in PIM haben. Als Endergebnis ergibt sich, dass die minimale stabile Geschwindigkeit hauptsächlich durch die Eigenschaften des feinporigen Schwammes bestimmt wurde, weil sich die Flamme im Fall geringerer Geschwindigkeiten stromaufwärts stabilisiert. Dem gegenüber ist die maximale Brenngeschwindigkeit hauptsächlich durch die Eigenschaften des grobporigen Schwammes bestimmt, da sich die Flamme in Fällen hoher Durchsätze stromabwärts befindet. Die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit des Schwammes in der Verbrennungszone resultiert in einer höheren maximalen Brenngeschwindigkeit. Die Wärmeleitfähigkeit der Vorwärmzone soll möglichst gering sein, um den Flammenrückschlag zu verhindern. Weiterhin kann eine Erweiterung des stabilen Betriebsbereichs des Porenbrenners durch die mit Änderung der Porengröße und somit der spezifischen Oberfläche verbundene Variation des Wärmeübergangskoeffizienten erreicht werden. Die Erhöhung des Wärmeübergangskoeffizienten in der Verbrennungszone intensiviert die Wärmerезirkulation und verbessert somit die Flammenstabilität. Jedoch sollte der Wärmeübergangskoeffizient in der Flammensperre geringer sein, um die minimale Brenngeschwindigkeit zu reduzieren. Die Manipulation der Porengröße mit dem Ziel, den Wärmeübergang zu intensivieren, ist aber mit der Änderung des Extinktionskoeffizienten verknüpft. Diese zwei Effekte, die aus der Änderung der Porengröße resultieren, wirken auf die Flammenstabilität entgegengesetzt. Wünschenswert ist ein möglichst hoher Extinktionskoeffizient in der Flammensperre (und somit eine kleine Porengröße). Vom Standpunkt der Strahlungseigenschaften des Schwammes in der Verbrennungszone zeigte die Parameteranalyse, dass es ein Optimum für den Extinktionskoeffizienten gibt. Dementsprechend behaupten die Autoren, dass ein sehr kleiner Extinktionskoeffizient, d.h. sehr große Poren, in einer zu großen Ausbreitung der Wärme mittels Strahlung resultieren, was wiederum eine geringe Vorwärmung des ankommenden Gasgemisches zur Folge hat. Im Gegensatz dazu schwächt ein zu ho-

her Extinktionskoeffizient die Wärmerückführung, was die Flammenstabilisierung negativ beeinflusst.

Eine Fortführung dieser numerischen Studie am gleichen Porenbrenner veröffentlichten Barra und Ellzey in [106]. Der Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen zeigte, dass das numerische Modell eine gute Voraussage für die maximale Brenngeschwindigkeit liefert. Die Abweichungen zwischen den experimentell ermittelten und berechneten minimalen Geschwindigkeiten wurden mit Ungenauigkeit der thermophysikalischen Parameter für den feinporigen Schwamm begründet. Das gewonnene Stabilitätsdiagramm mit beiden, oberen und unteren Stabilitätsgrenzen für unterschiedliche Brennstoffzahlen, ist in Abb. 2.34 dargestellt. Die Stabilitätsgrenzen sind als Verhältnis zwischen der effektiven Brenngeschwindigkeit (effektive, interstitielle Gasgeschwindigkeit im Fall der stabilen Flamme) und laminaren Flammgeschwindigkeit FSR („Flame Speed Ratio“) gegeben. Man beobachtet, dass ein 10 PPI PSZ-Porenbrenner bis zu fünf mal höhere Brenngeschwindigkeiten im Vergleich zur laminaren Gasflamme gewährleisten kann. Die Effizienz der Wärmerückführung ist als Verhältnis zwischen dem Wärmetransport in der Vorwärmzone und der thermischen Leistung definiert und in Abhängigkeit von FSR für unterschiedliche Brennstoffzahlen in Abb. 2.35 dargestellt. Die hohen effektiven Brenngeschwindigkeiten für magere Gasgemische resultieren aus einer hohen Wärmerückführung: Bei einer Brennstoffzahl von 0,55 werden bis zu 26% der Wärme zurückgeführt gegenüber der Brennstoffzahl von 0,9 mit maximal 13% der Wärmerückführung.

Für die Wärmerückführung in Richtung Vorwärmzone spielen beide, Wärmeleitung und Strahlung im Feststoff, eine wichtige Rolle. Um die relative Wichtigkeit dieser Wärmetransportmechanismen für die Flammenstabilisierung zu untersuchen, wurden in [106] sowohl eine Wärmeleitungsvorwärmeffizienz als Verhältnis zwischen der Wärmeleitung im Festkörper und der thermischen Leistung, als auch eine Strahlungsvorwärmeffizienz als Verhältnis zwischen der Festkörperstrahlung und der

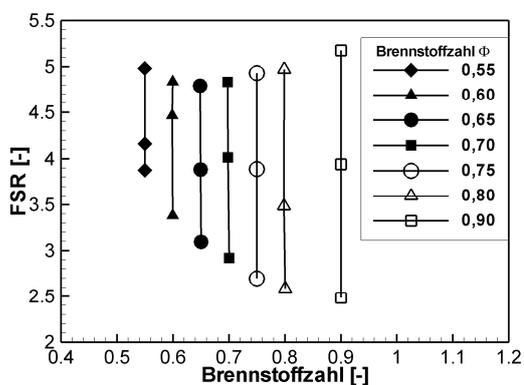


Abbildung 2.34: Stabilitätsdiagramm für einen PSZ-Porenbrenner [106]

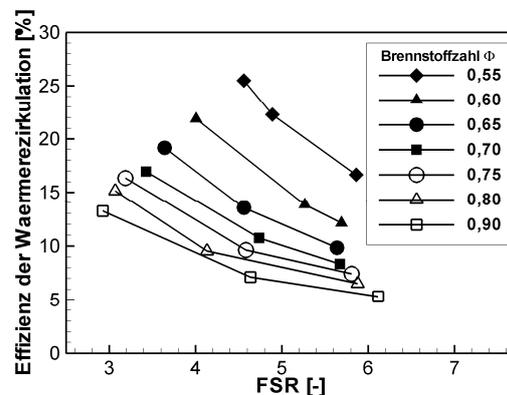


Abbildung 2.35: Effizienz der Wärmerückführung [106]

thermischen Leistung definiert. Diese Größen sind zusammen mit der Effizienz der Wärmereizirkulation für drei unterschiedliche Brennstoffzahlen in Abb. 2.36 aufgezeigt. Der dominierende Wärmetransportmechanismus ist abhängig von der Brennstoffzahl und FSR. Mit der Erhöhung von beiden, Brennstoffzahl und FSR, überwiegt der Beitrag der Strahlung.

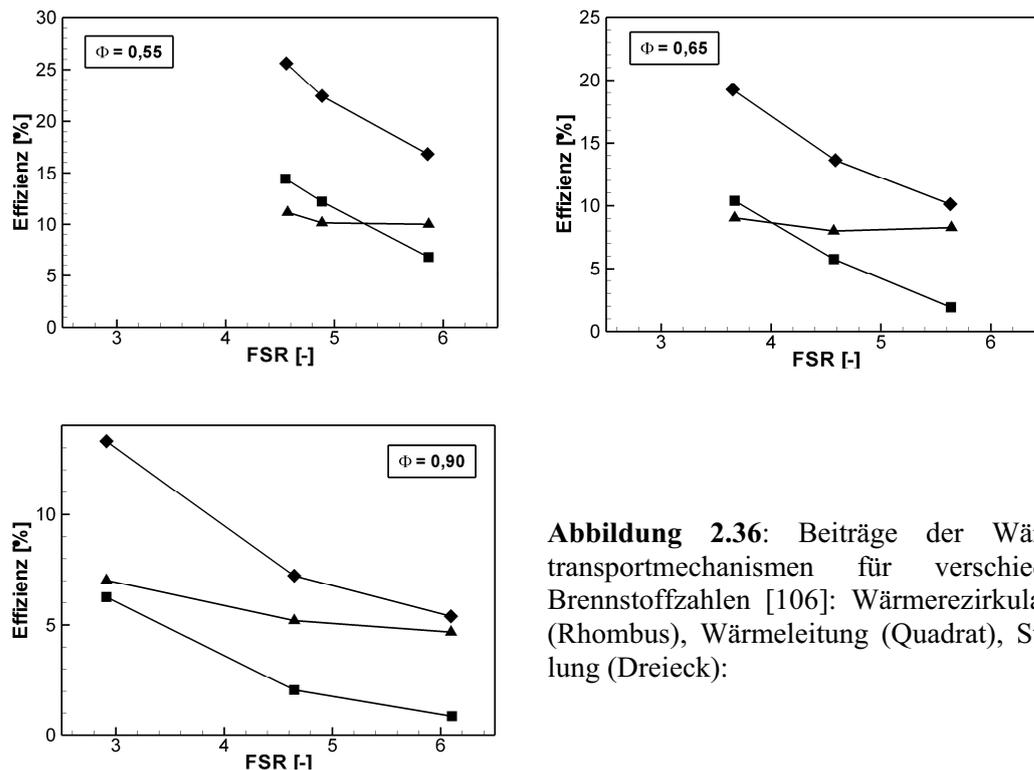


Abbildung 2.36: Beiträge der Wärmetransportmechanismen für verschiedene Brennstoffzahlen [106]: Wärmereizirkulation (Rhombus), Wärmeleitung (Quadrat), Strahlung (Dreieck):

Sehr selten wird die Verbrennung im PIM dreidimensional modelliert wie z. B. in [161]. Hier wurde ein Brenner untersucht, der einen SiC-Schwamm in der Verbrennungszone beinhaltet. Da als Flammensperre eine perforierte Al_2O_3 -Platte diente, beeinflussen die von der Flammensperre ausgehenden Fluidstrahlen das Strömungsprofil im Schwamm. Demzufolge wurde die n-Heptan Oxidation als eine irreversible Einzelschrittreaktion dreidimensional modelliert. Hierbei ist es nötig, zusätzlich die Impulserhaltungsgleichung neben den Energiebilanzen für Feststoff und Gas, Spezieserhaltungsgleichungen und Massenerhaltungsgleichung zu lösen. Der zusätzliche Term in der Impulsbilanz – der Druckverlust aufgrund des porösen Mediums – wurde mit modifizierter Ergun-Gleichung modelliert [162]. Eine Dissipation der Fluidstrahlen aufgrund des intensivierten Mischens innerhalb des Schwammes wurde beobachtet und resultierte in einem relativ planaren Strömungsprofil. Für die meisten untersuchten Bedingungen bezüglich der Gasgeschwindigkeit (unterschiedliche thermische Leistungen und Luftzahlen) stabilisierte sich die Flamme an der Grenzfläche zwischen der Flammensperre und dem Schwamm. Ausnahmsweise wurde für die

geringen thermischen Leistungen und Luftzahlen die Fortpflanzung der Flamme innerhalb der Löcher der Flammensperre detektiert. Dieser Effekt wird als Rückschlag bezeichnet und deshalb als unerwünscht betrachtet.

Eine der wenigen numerischen Stabilitätsuntersuchungen der Verbrennung in festen Schwämmen ist vor kurzem in [102] publiziert worden. Es wurde Methan/Luft-Vormischverbrennung in einem SiC-Schwamm definierter Länge simuliert. Das ein-dimensionale Modell berücksichtigt die Gas- und Festkörperenergiegleichung. Die Reaktionskinetik wurde mit einer irreversiblen einzelschritt chemischer Reaktion. Die numerischen Ergebnisse deuten darauf hin, dass die Flamme sich entweder auf der Schwammoberfläche oder innerhalb des Schwammes stabilisieren kann. Der Einfluss des Rechengebiets, der Randbedingungen und der Behandlung der Feststoff/Gas-Grenzfläche auf die Flammenstabilität wurde untersucht. Der Strahlungsterm in der Energiegleichung für den Feststoff wurde mittels der „Diskrete Ordinate“-Methode berechnet. Zusätzlich wurde die Festkörperstrahlung mit der einfachen Rosseland-Gleichung (siehe Abschnitt 2.1.3.2, Gl.2.34) unter der Annahme eines optisch dichten Mediums modelliert. Die Stabilitätsuntersuchung der Flamme innerhalb des Schwammes wurde unter Verwendung verschiedener Strahlungsmodelle durchgeführt. Für die, für die vorliegende Arbeit relevanten Bedingungen lieferte das Rosseland-Modell höhere Brenngeschwindigkeiten als im Fall der Diskreten Ordinate-Methode. Trotzdem eignet sich das einfache Rosseland-Modell zur Beschreibung des allgemeinen Effekts der Schwammstrahlung, obwohl die Möglichkeit besteht, dass die ermittelten Brenngeschwindigkeiten etwa überschätzt werden. Aus dem mit dem Modell ohne Berücksichtigung der Festkörperstrahlung ermittelten Stabilitätsdiagramm ersieht man die hohe Wichtigkeit des Wärmetransportes mittels Strahlung für die Wärmerezirkulation im Schwamm und die Flammenstabilisierung. Die gerade diskutierte numerische Studie [102] über die Flammenstabilität im Schwamm leistet einen bedeutenden Beitrag zum Verständnis der Phänomene, die bei der Flammenstabilisierung in einem festen Schwamm mitwirken. Jedoch sagt das vorliegende Modell nur vier-, bis fünfmal (abhängig vom verwendeten Strahlungsmodell) höhere Brenngeschwindigkeiten in einem SiC-Schwamm im Vergleich zur laminaren Gasflamme voraus. Diese Aussage weicht aber erheblich ab von den mehrfach höheren experimentell ermittelten Brenngeschwindigkeiten im SiC-Schwamm [163, 13]. Der Grund dafür könnte an ungenauen Schwammparametern liegen, die für die Berechnung angenommen wurden.

Aus der in diesem Kapitel gegebenen ausführlichen Übersicht der existierenden experimentellen und numerischen Studien der Verbrennung in Schwammstrukturen lässt sich folgern, dass sowohl das Strömungsfeld, das sich aus der Strukturgeometrie ergibt, als auch die Wärmetransporteigenschaften des Porenkörpers eine entscheidende Rolle für die Flammenstabilisierung in einem Porenbrenner spielen. Obwohl die zahlreichen experimentellen Untersuchungen an Porenbrennern verschiedener Ausführung und mit diversen Schwämmen durchgeführt wurden, sind die Angaben bezüglich der Flammenstabilität noch mangelhaft [102]. Um einen Porenbrenner optimieren zu können, sind die systematischen Untersuchungen des Einflusses ver-

schiedener Struktur- und Stoffparameter auf die Flammenstabilität erforderlich. Daraus ergibt sich das Ziel der vorliegenden Arbeit. Schwämme aus zwei unterschiedlichen Werkstoffen wurden im Rahmen dieser Untersuchungen eingesetzt, um den Einfluss der Materialeigenschaften auf den Verbrennungsvorgang beschreiben zu können. Hierfür wurde einmal das mit sehr hoher Wärmeleitfähigkeit und Emissivität charakterisierte Silizium-infiltrierte Siliziumkarbid (SiSiC) und einmal das schwacher leitende und strahlende Aluminiumoxid untersucht. Wie in Kapitel 2.1.3 gezeigt wurde, ergeben sich die Wärmetransporteigenschaften der Schwämme aus der Strukturgeometrie. Daher ist es möglich, die Wärmetransportvorgänge bei den Schwämmen aus einem Werkstoff durch die Variation der Porengröße bzw. der Porosität zu beeinflussen. Demzufolge wurde bei den hier durchgeführten Flammenstabilitätsuntersuchungen für den jeweiligen Werkstoff die Porendichte und somit die Porengröße variiert. Die Auswirkung der Schwammporosität auf die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner wurde an Aluminiumoxid-Schwämmen beobachtet. Die aus den experimentellen Stabilitätsuntersuchungen gewonnenen Ergebnisse und ihre Interpretation sind im Kapitel 4.1 aufgeführt.

Zusätzlich zur experimentellen Untersuchung wurde die Verbrennung im porösen Medium numerisch, durch Lösen der eindimensionalen Modellgleichungen, berechnet. Ein numerisches Modell, das mit guter Genauigkeit die Realität widerspiegeln kann, ermöglicht, dass die Daten mit vergleichsweise geringem Aufwand für unterschiedliche Betriebsbedingungen und Einflussparameter ermittelt werden. Darüber hinaus sind bei den numerischen Untersuchungen Daten zugänglich, die entweder nicht oder nur mit großem Aufwand experimentell bestimmt werden können. Von den zahlreichen Modellen der Verbrennung in festen Schwämmen wurden nur wenige für die Untersuchung der Flammenstabilität angewandt. Die meisten Modelle liefern einen relativ großen Fehler in der Voraussage des Betrages der Brenngeschwindigkeit auf der einen Seite und der Tendenz der Abhängigkeit Brenngeschwindigkeit/Luftzahl auf der anderen Seite (Abb. 2.32). Ein eindimensionales Modell der Verbrennung in festen Schwämmen wurde in dieser Arbeit vorgeschlagen und durch die entsprechenden experimentellen Versuche validiert. Nun ergab sich die Möglichkeit, die Wichtigkeit unterschiedlicher grundlegender Transportvorgänge für die Flammenstabilisierung zu untersuchen. In Kapitel 4.2 wird das eingesetzte Modell erläutert und die gewonnenen Ergebnisse gezeigt und diskutiert.

3 Versuchsaufbau und Messtechnik

Das Ziel des experimentellen Teils der vorliegenden Arbeit war die Bestimmung der Flammenstabilitätsdiagramme in diversen Porenbrennerkonfigurationen und die Ermittlung der gesamten Schadstoffemissionen. Zusätzlich wurde eine Charakterisierung der untersuchten Schwammstrukturen anhand einer Druckverlustmessung durchgeführt. Um einen genaueren Einblick in den Verbrennungsvorgang in einem Porenbrenner zu bekommen, wurden weiterhin die axialen Emissionsprofile innerhalb des Porenbrenners und die Schwammtemperatur am Brenneraustritt gemessen. In diesem Kapitel werden zunächst die untersuchten porösen Materialien präsentiert. Weiter werden die Prinzipien der in dieser Arbeit eingesetzten Messungen, ihre Verfahrensweisen und der dafür eingesetzte Versuchsaufbau vorgestellt.

3.1 Eingesetzte poröse Materialien

Das Prinzip des Flammenstabilisierungsmechanismus im Porenbrenner beruht auf einer Intensivierung des Wärmetransportes durch das Einsetzen einer porösen festen Matrix in der Reaktionszone (siehe Kapitel 2.2.3). Dementsprechend ist der Stabilisierungseffekt eines im Porenbrenner eingesetzten Schwammes stark von seiner Wärmetransporteigenschaften abhängig. Darüberhinaus hängen die für die Flammenstabilisierung essenziellen thermo-physikalischen Schwammparameter mit den Eigenschaften des eingesetzten Werkstoffes und mit den geometrischen Strukturmerkmalen zusammen (siehe Kapitel 2.1.2 und 2.1.3).

Um das Verhalten eines Porenbrenners zu optimieren, ist es grundlegend die komplexe Wechselwirkungen zwischen der Flammenstabilität und den makroskopischen geometrischen Eigenschaften (siehe Kapitel 2.1.1.1) des Schwammes zu untersuchen. In diesem Zusammenhang wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit diverse Schwammstrukturen erforscht. Grundsätzlich wurden Schwämme aus zwei Materialien eingesetzt:

- Aluminiumoxid (Al_2O_3) – Werkstoff geringer Wärmeleitfähigkeit und Emissivität sowie hoher thermischer Stabilität;
- Silizium infiltriertes Siliziumkarbid (SiSiC^*) – Werkstoff ausgezeichneter Wärmeleitfähigkeit und Emissivität sowie vergleichsweise geringer thermischer Stabilität.

Die wichtigen technischen Parameter der verwendeten reinen Werkstoffe sind in Tab. 2.1 angegeben. Mit dem Ziel den Einfluss geometrischer Parameter (PPI-Zahl und Porosität) auf die Flammenstabilität im Porenbrenner zu untersuchen wurden diese bei den Schwämmen aus beiden Materialien variiert und die untersuchten Brennerkonfigurationen sind in Tab. 3.3 spezifiziert. Die Fotoaufnahmen der in der Verbrennungszone eingesetzten Schwammstrukturen sind in Abb. 3.1 zu sehen. Weiterhin wurde in Kapitel 2.1 erläutert, dass alle wichtigen technischen Parameter fester Schwämme stark von ihrer Geometrie abhängig sind und durch die lokale Topologie stark beeinflusst werden. Auf Grund der lokalen Topologie streuen die Werte der Schwammparameter auch für die Schwämme gleicher Nenncharakteristiken (PPI-Zahl, Porosität) wesentlich. Auf Grund dessen wurde eine geometrische Charakterisierung der untersuchten Strukturen mittels

* Die aus SiC hergestellten Schwämmen sind zusätzlich mechanisch stabilisiert indem die sich aus Replika-Herstellungsverfahren ergebenden Steghohlräume mit reinem Silizium gefüllt wurden.

Kernspinnresonanztomographie (für Al_2O_3 -Schwämme) bzw. Computertomographie (für SiSiC-Schwämme) im Rahmen der Forschergruppe 583 „Feste Schwämme – Anwendung monolithischer Netzstrukturen in der Verfahrenstechnik“ durchgeführt. Eine ausführliche Beschreibung des Messverfahrens und der Auswertung zusammen mit den ermittelten geometrischen Parametern ist in [164] veröffentlicht. Die charakteristischen geometrischen Größen der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Schwammstrukturen sind in Tab. 3.1 gegeben.

Tabelle 3.1: Geometrische Charakterisierung eingesetzter Schwämme [164]

Werkstoff	Porendichte* [PPI]	Porosität* [%]	S_V [m^{-1}]	d_F [mm]
Al_2O_3 (Fa. Vesuvius)	10	85	629	1,952
	10	80	664	1,796
	20	85	1109	1,137
SiSiC (Fa. Erbicol)	10	87	477	2,181
	20	87	683	1,603

* Nominelle Angabe des Herstellers

Im Fokus dieser Arbeit steht die Vormischverbrennung in keramischen Schwämmen. Um den Flammenrückschlag in einem Porenbrenner zu vermeiden, ist es deshalb nötig eine Flammensperre einzubauen. Hier wurde als Flammensperre eine feinporige Schwammstruktur (s. Abb. 3.2) verwendet, welche mit den in Tab. 3.2 gegebenen nominellen Angaben charakterisiert wurde. Die Funktion einer derartigen Flammensperre beruht auf dem Prinzip des Löschabstandes [165]. Beim Fortpflanzen der Flamme stromaufwärts (Flammenrückschlag) wird am Eintritt in die Flammensperre aufgrund ihrer hohen spezifischen Oberfläche durch die Wärmeübertragung mehr Wärme verloren, als in der Flamme freigesetzt wird. Dies führt zum Quenchen der Flamme.

Tabelle 3.2: Die verwendete Flammensperre

Werkstoff	Porendichte [PPI]	Porosität [%]
PSZ (Mg)* (Fa. Vesuvius)	45	80

* ZrO₂ stabilisiert mit MgO

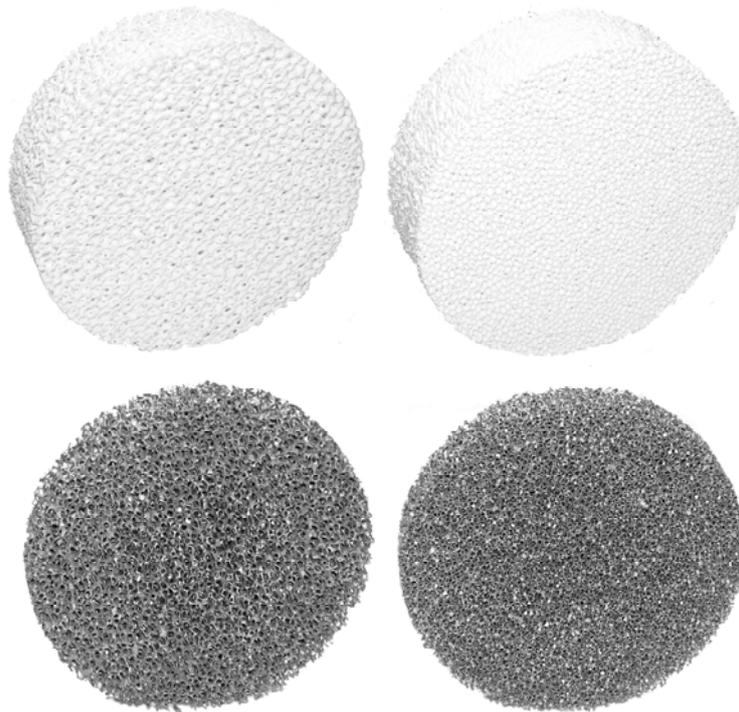


Abbildung 3.1: Keramische Schwämme: 10 PPI Al₂O₃ (oben links), 20 PPI Al₂O₃ (oben rechts), 10 PPI SiSiC (unten links), 20 PPI SiSiC (unten rechts)

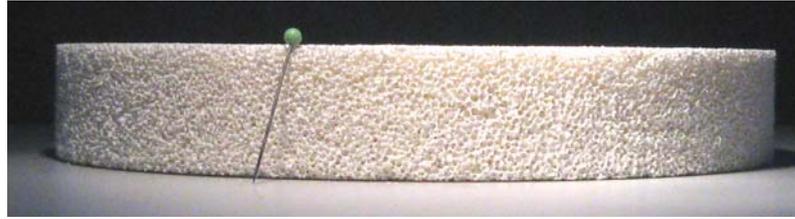


Abbildung 3.2: Flammensperre – 45 PPI PSZ (Mg)

Lokale Strukturinhomogenitäten

Die Imperfektionen der Schwammstruktur in Form der verdickten Stege bzw. geschlossenen Fenster treten aufgrund der Unvollkommenheit des Herstellungsprozesses auf, sie sind zufällig in der Struktur verteilt und stellen ein kennzeichnendes Merkmal keramischer Schwämme dar. Solche Imperfektionen beeinflussen zwar alle technischen Eigenschaften keramischer Schwämme, sind aber gewöhnliche Erscheinungen und auch ein der Hauptgründe, dass die Beschreibung dieser Strukturen mit allgemein gültigen Korrelationen nur mit relativ großer Ungenauigkeit möglich ist.

Im Gegensatz zu diesen immer auftretenden und für keramische Schwämme typischen Strukturimperfektionen erscheinen – bedingt durch einen nicht optimierten Herstellungsprozess – noch Strukturinhomogenitäten einer anderen Art. Diese Strukturinhomogenitäten erfassen nicht nur einzelnen zufällig verteilten Fenster/Knoten/Stegen, sondern verbreitern sich auf größeren Volumenelementen. Derartige Strukturinhomogenitäten führen nicht nur zu den großen Abweichungen der tatsächlichen Schwammparameter von denen die anhand der Literaturkorrelationen ermittelt wurden, sondern auch zu einer starken Veränderung des Strömungsfeldes im Schwamm d.h. der Flammenform bzw. deren Position.

Eine während der Messungen detektierte Ungleichmäßigkeit der Temperatur (Farbe) der Schwamtoberfläche bei den Al_2O_3 -Schwammproben höherer Porendichte und geringerer Porosität führte zu einem Verdacht auf solche Strukturinhomogenitäten. Um die Existenz dieser Strukturinhomogenitäten zu überprüfen, wurden einige Schwämme so zersägt, dass eine Probe mit der Größe $5 \times 5 \times 5$ cm aus der Mitte des Schwammes extrahiert werden konnte. Abbildung 3.3 zeigt die Fotoaufnahmen der derart ausgesägten Proben. Es ist schon rein visuell festzustellen, dass Zonen mit relativ vielen geschlossenen Zellen und Zonen mit relativ vielen offenen Zellen auftreten. Dieser Befund resultiert in einer lokalen Änderung der Porosität. Als Begründung für die Inhomogenität der Schwämme

wurde von Seiten des Herstellers angeführt, dass es während des Herstellungsprozesses beim Arbeitsschritt des Pressens (siehe *Replikatechnik-Herstellungsvorgang* im Kapitel 2.1.1.1) nicht möglich war, den Überschuss des Schlickers vollständig zu entfernen. Während der Sinterphase und aufgrund der wirkenden Schwerkraft entstand so zusätzlich eine dünne Zone mit verdickten Stegen am Boden des Schwammes. Auch dies ist in Abbildung 3.3 am unteren Rand der Proben zu erkennen.

Derartige Strukturinhomogenitäten führen in Bezug auf die Strömung zu Vorzugsrichtungen innerhalb des Schwammes. Dabei ist die Strömungsgeschwindigkeit auf Grund des geringeren Druckverlustes bereichsweise erhöht. Die lokale Geschwindigkeit des Fluids innerhalb des Schwammes kann wie folgt beschrieben werden:

$$u_{lok} = \frac{U_0}{\varepsilon_{lok}} \quad (3.1)$$

Damit ist ersichtlich, dass als Folge der lokalen Verringerung der Porosität eine erhöhte lokale Fluidgeschwindigkeit resultiert. Wenn die lokalen Strömungsgeschwindigkeiten größer als die Brenngeschwindigkeit werden, führt dies zu einem lokalen Verlöschen der Flamme.

Die detektierten Strukturinhomogenitäten werden mit steigender Porendichte und sinkender Porosität immer ausgeprägter. Demzufolge war es nicht möglich die Flammenstabilität in einem 30 PPI Schwamm zu untersuchen, da das Temperaturfeld bei der Verbrennung in einem solchen Schwamm schon rein optisch als sehr ungleichmäßig festzustellen war (heiße und kalte Zonen).

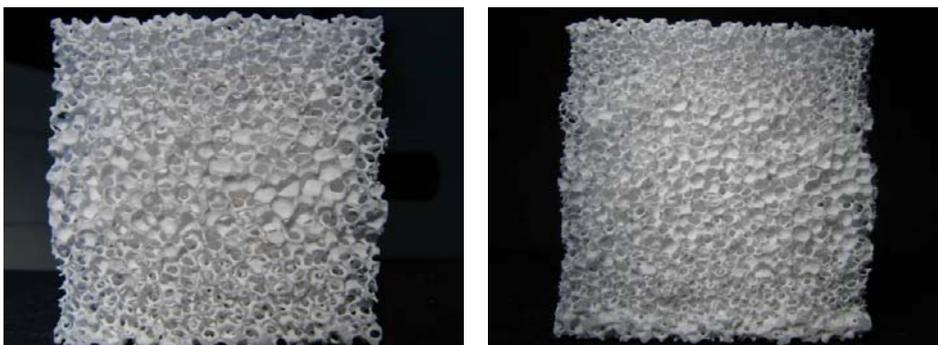


Abbildung 3.3: Strukturinhomogenitäten eines 20 PPI Alumina-Schwammes mit Nennporosität 0,85 (links) und eines 30 PPI Alumina-Schwammes mit Nennporosität 0,85 (rechts)

3.2 Aufbau der Versuchsanlage

Eine schematische Darstellung der Versuchsanlage ist in Abbildung 3.4 zu sehen. Sie setzt sich aus den Teilkomponenten: Luftversorgung, Erdgasversorgung, Wasserkühlung, Abgasanalyse, Porenbrenner und Datenerfassungssystem zusammen. Die einzelnen Komponenten werden im Folgenden näher erläutert.

Brennstoffversorgung

Als Brennstoff wird Erdgas H verwendet, welches direkt aus dem Leitungsnetz der Stadt Karlsruhe entnommen wird. Der für die jeweils gewünschte thermische Leistung erforderliche Brennstoffstrom wird über einen Schwebekörperdurchflussmesser (Typ RAMC der Firma YOKOGAWA) gemessen, der gleichzeitig ein Messsignal an die Messdatenerfassung liefert.

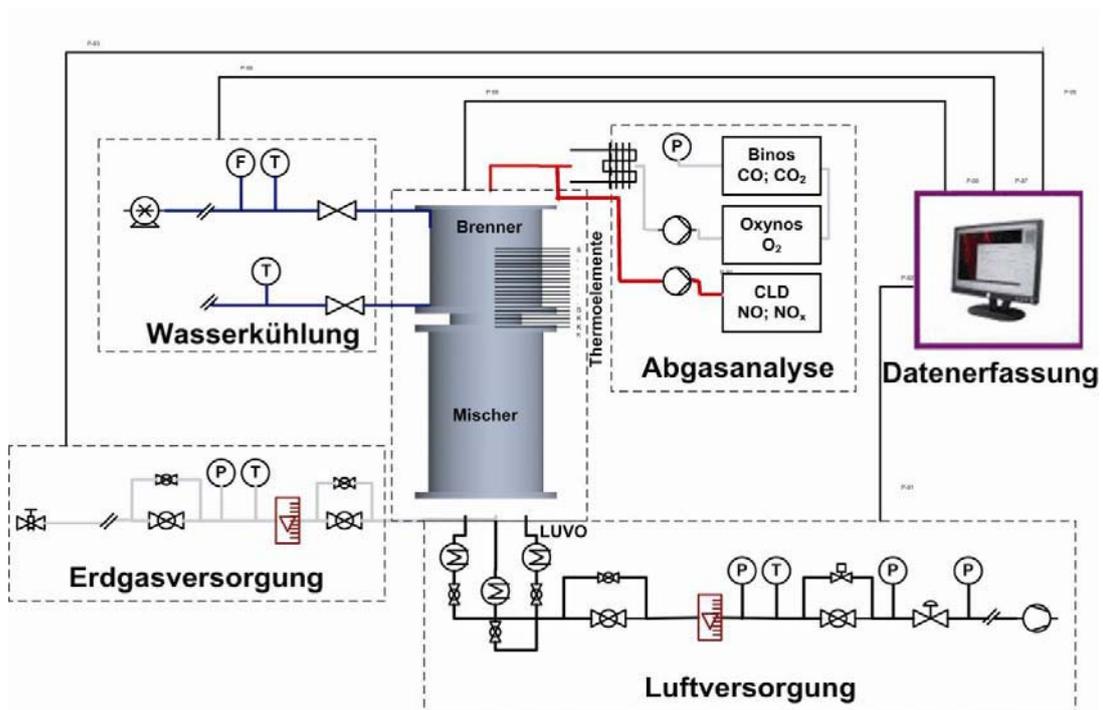


Abbildung 3.4: Der Porenbrenner für Untersuchungen unter atmosphärischem Druck

Luftversorgung

Das für die Verbrennung eingesetzte Oxidationsmittel Luft wird mit einem Vordruck von ca. 1,3 bar mit Hilfe eines Drehkolbengebläses der Anlage bereitgestellt. Die Erfassung des Luftdurchsatzes in dieser Leitung erfolgt über einen Massendurchflussmesser (Fa. BRONKHORST) der ein Messsignal an den Messrechner weitergibt.

Vor dem Eintritt in die Brennkammer strömt die Verbrennungsluft abhängig vom erforderlichen Durchfluss durch einen, zwei oder drei Luftheritzer der Firma LEISTER (Typ 10000 S).

Wasserkühlung des Versuchsträgers

Die Kühlung des Versuchsträgers erfolgt durch Anschluss an einen zentralen Kühlkreislauf. Das Kühlmittel ist ein Wasser/Glykol-Gemisch das mittels einer Pumpe umgewälzt wird.

Datenerfassung

Grundlage für die Messelektronik bildet die Computersoftware LabVIEW 8.0, welche es ermöglicht die Daten online auszuwerten und zu speichern. Die Informationen zu dieser Benutzeroberfläche kamen aus dem Analog-Digital-Wandler, der die analogen Signale der Messelemente in digitale verändert, wobei sich die Eingangssignale aus den Temperatur-, Druck- und Volumen- bzw. Massenstrommessinstrumenten zusammensetzen.

3.2.1 Porenbrenner

Der für die Untersuchungen unter atmosphärischen Bedingungen ausgelegte Porenbrenner ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Die Hauptkomponenten des Porenbrenners sind: eine wassergekühlte Brennkammer mit wassergekühltem Deckel, eine Vormisch-/Vorwärmzone, ein statischer Mischer und eine Einheit für die Vorwärmung der Verbrennungsluft. Der Konstruktionsträger der gesamten Anlage ist aus Edelstahl hergestellt, um den Schutz vor Korrosion sicherzustellen. Innerhalb der Brennkammer befindet sich eine Verbrennungszone, die aus einem

großporigen Schwamm ($D=160$ mm) besteht. Die während der Experimente in der Reaktionszone eingesetzten Schwämme sind in Tabelle 3.1 gelistet. Um die gewünschte Länge der Verbrennungszone von 200 mm zu erreichen, war es erforderlich vier (bei Al_2O_3 -Schwämme) bzw. acht (bei SiSiC) einzelne Schwämme abhängig von ihren Höhen zu stapeln. Die innere Brennkammerwand wurde mit Feuerleichtsteinen und Fasermatten isoliert. Um die seitliche Abdichtung der Schwämme zu gewährleisten, wurden diese vor dem Einsetzen in die Brennkammer auf der Umfangsfläche mit dem feuerfesten Mörtel BLAKIT (Fa. Contherm) beschichtet und bei 1100°C gebrannt.

Zur Vermeidung eines Flammenrückschlags wurden in der sich stromauf der Verbrennungszone befindlichen Vormisch-/Vorwärmzone zwei feinporige Schwämme der Höhe $H=25$ mm gestapelt (siehe Tabelle 3.2). Das Verhindern des Flammenrückschlags beruht auf der Wirkung des Phänomens des Löschabstandes. Der Löschabstand verringert sich mit steigender Temperatur. Um eine gute Wärmeabfuhr zu gewährleisten und somit einen Rückschlag möglichst effektiv zu vermeiden, wurde die Brennkammer im Bereich der Vormisch-/Vorwärmzone nicht isoliert. Die Schwämme der Verbrennungszone (großporig) und der Vormisch-/Vorwärmzone (feinporig) berühren sich nicht, sondern sind in einem Abstand von 1 cm angeordnet, um die Wärmeübertragung durch Wärmeleitung von Festkörper zu Festkörper auszuschließen. Die zwei feinporigen Schwämme erfüllen zusätzlich die Aufgabe, die Mischungsgüte des Brenngas-/Luft Gemisches zu verbessern.

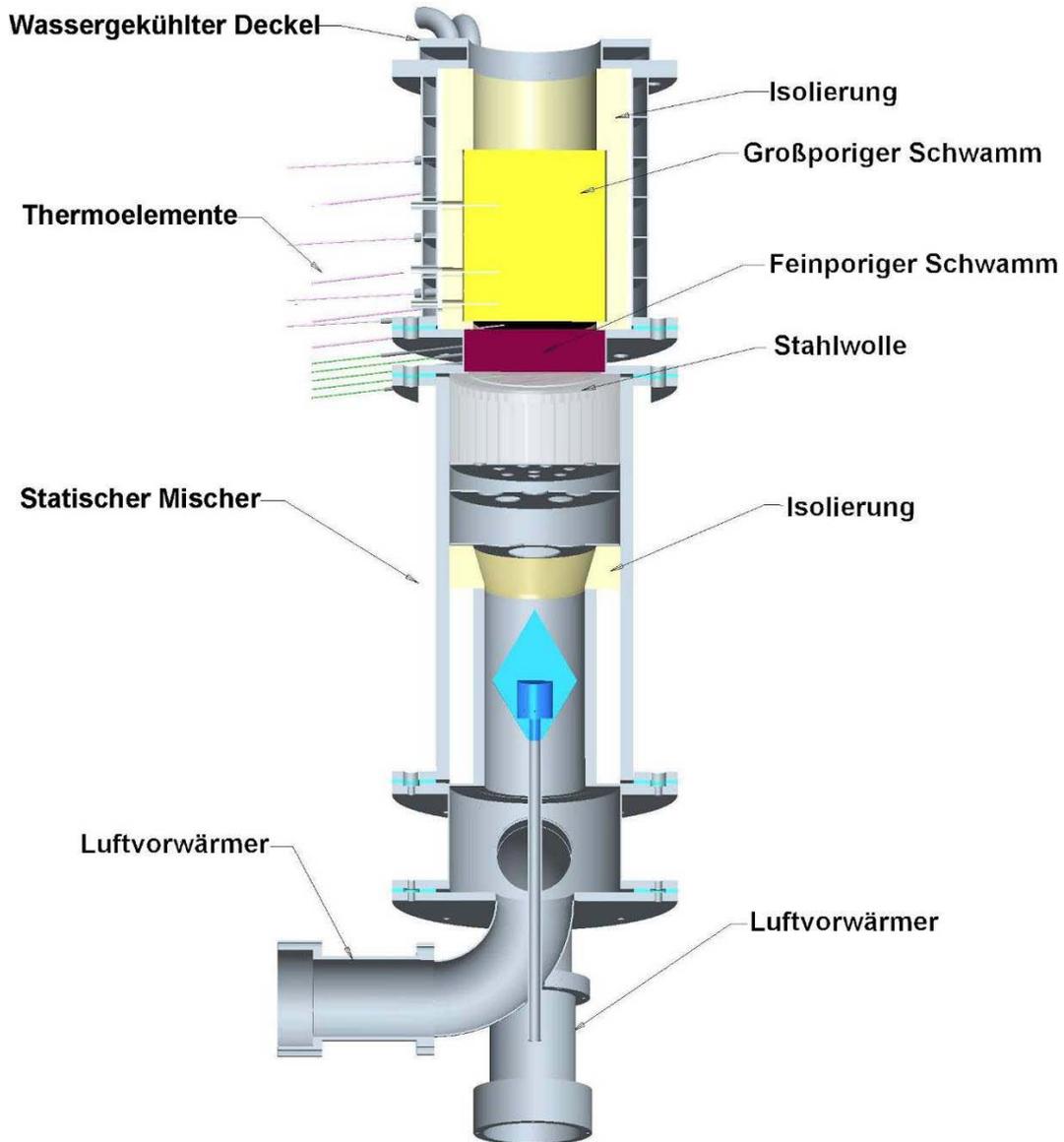


Abbildung 3.5: Der Porenbrenner für Untersuchungen unter atmosphärischem Druck

Table 3.3: Untersuchte Brennerkonfigurationen und Betriebsbedingungen

Brenner- konfiguration	Reaktionszone			Flammen- sperre	T _{VW} [°C]	P _{th} [kW]
	Werkstoff	PPI	Porosität			
K01	99,5 % Al ₂ O ₃ (Vesuvius)	10	85%	MgO/ZrO ₂ 45 PPI 80%	25	30, 40, 50, 60
					350	30, 50, 70, 90, 110
K02	99,5 % Al ₂ O ₃ (Vesuvius)	20	85%		25	30, 50
					350	30, 50, 70
K03	99,5 % Al ₂ O ₃ (Vesuvius)	10	80%		25	30, 40, 50, 60, 70
					350	30, 50, 70, 90, 110
K04	SiSiC (Erbicol)	10	87%		25	20, 30, 40, 50
					85	20, 30, 40, 50
					350	30, 40, 50, 60
K05	SiSiC (Erbicol)	20	87%		25	20, 30, 40, 50
				85	20, 30, 40, 50	
				350	30, 40, 50, 60	

3.2.1.1 Statischer Mischer

Besondere Aufmerksamkeit wurde auf die Auslegung des statischen Mixers gelegt. Eine eventuell vorhandene Ungleichmäßigkeit in der Verteilung des Gasmischtes vor der Verbrennungszone würde eine lokale Luftzahlverschiebung ergeben. Damit wäre die Gefahr für eine lokale Erhöhung der Verbrennungstemperatur gegeben, was wiederum zu einer Beschädigung der Schwämme führen könnte. Aus diesem Grund wurde die Konstruktion des Mixers schrittweise optimiert. Nach jeder Modifikation wurde der Wirkungsgrad des Mixers erfasst, um die Auswirkung der jeweiligen Konstruktionsänderung zu analysieren.

Untersuchungen des Wirkungsgrads des Mischers

Die Mischungsgüte des statischen Mischers wurde durch die Messung der Konzentrationsverteilung am Auslass des feinporigen Schwammes (siehe Abb. 3.5) quantifiziert. Da die Untersuchung des Wirkungsgrades vom statischen Mischer die Entfernung der Brennkammer erforderte, wurde durch die Brennstoffleitung Luft statt des Erdgases gefördert. Dazu wurde dem sekundären Luftstrom Kohlendioxid als Marker beigemischt. Die Konzentration des Kohlendioxids wurde mittels einer Absaugsonde und einem nachgeschalteten BINOS-Analysegerät gemessen. Die Konzentrationsverteilungen am Ausgang der Flammensperre wurden für die Bedingungen gemessen, welche verschiedenen Luftzahlen und Durchsätzen der Verbrennungsluft entsprechen. Der Versuchsaufbau für diese Untersuchungen ist in Abbildung 3.6 gezeigt.

Konstruktion des statischen Mischers

Die durch die zuvor beschriebene Vorgehensweise optimierte Konstruktion des statischen Mischers ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Eine kegelförmige Geometrie ist in der Achse eines Rohres positioniert. Durch die symmetrisch angeordneten Bohrungen wird der Brennstoff senkrecht zum Luftstrom eingedüst und somit wird durch das „jet in cross flow“ Phänomen der Mischensvorgang intensiviert. An der Stelle des engsten für die Luftströmung freien Querschnitts wird die kinetische Energie der strömenden Luft stark erhöht und für das Mischen zur Verfügung gestellt. Der obere Teil der konischen Brennstoffflanze wirkt wie ein Diffusor und verhindert somit die Bildung großer Wirbel innerhalb des Mischers. Der Gasgemischstrom wird weiter durch einen aus Feuerleichtsteinen hergestellten Diffusor aufgeweitet. Die eingesetzten Stahlscheiben mit den Bohrungen unterschiedlicher Anzahl und Größe führen zur Turbulenzerzeugung und zum Mischen. Der statische Mischer endet mit einer mit Stahlwolle ausgefüllten Sektion für die Strömungshomogenisierung. Am Auslass des statischen Mischers ist der Teil mit der Vormisch-/Vorwärmzone (Flammensperre) montiert.

Abbildung 3.8 zeigt beispielhaft ein Ergebnis der Messung der Mischungsgüte. Es ist zu erkennen, dass die Verteilung des Markierungsgases CO_2 über den Austrittsradius sehr homogen ist. Dies dokumentiert die hohe Effektivität der optimierten Mischereinheit.

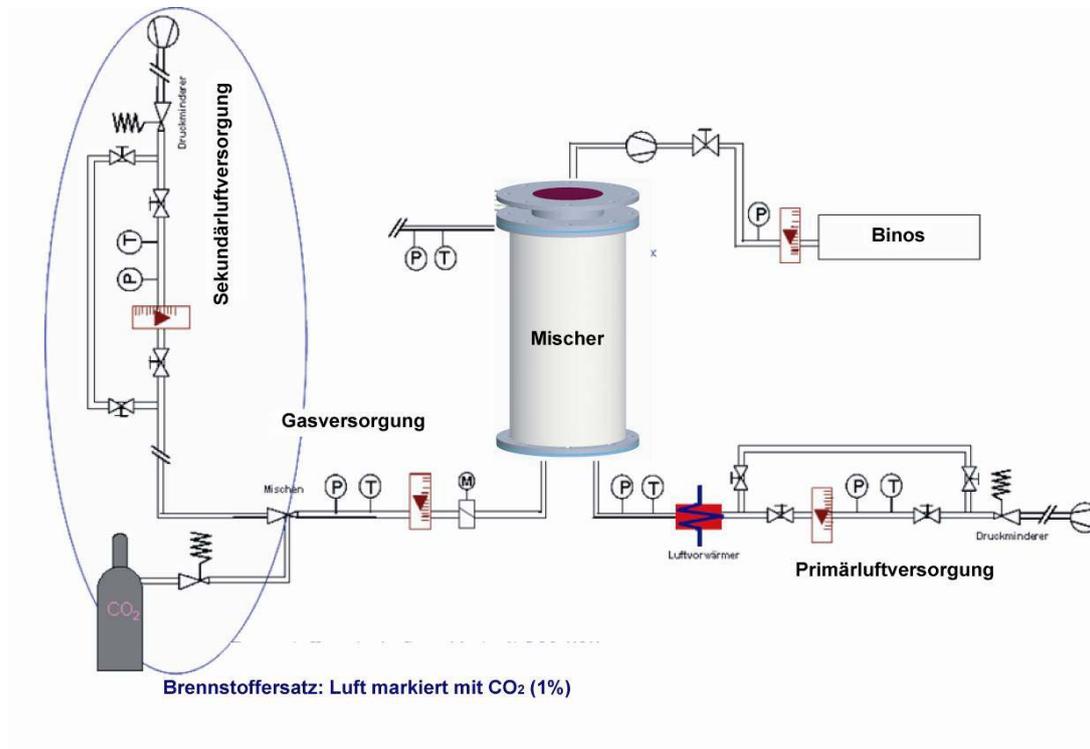


Abbildung 3.6: Versuchsaufbau für die Untersuchung des Wirkungsgrads des Mischers

Um ein quantitatives Kriterium für das Schädigungspotenzial der Konzentrationsvariation zu erhalten, wurden die gemessenen Konzentrationen in lokale Stöchiometriewerte (Luftzahlen) umgerechnet. Anhand dieser Luftzahlen konnte über die daraus berechenbare adiabate Verbrennungstemperatur (thermodynamisches Gleichgewicht) eine maximale Variation der zu erwartenden Temperatur berechnet werden. In Abbildung 3.9 sind die sich so ergebenden Temperaturverläufe dargestellt. Auf Grund der sehr homogenen Mischung ergeben sich sehr gleichmäßige Temperaturprofile. Die zu erwartende maximale Abweichung vom Mittelwert der adiabaten Flammentemperatur beträgt 10K.

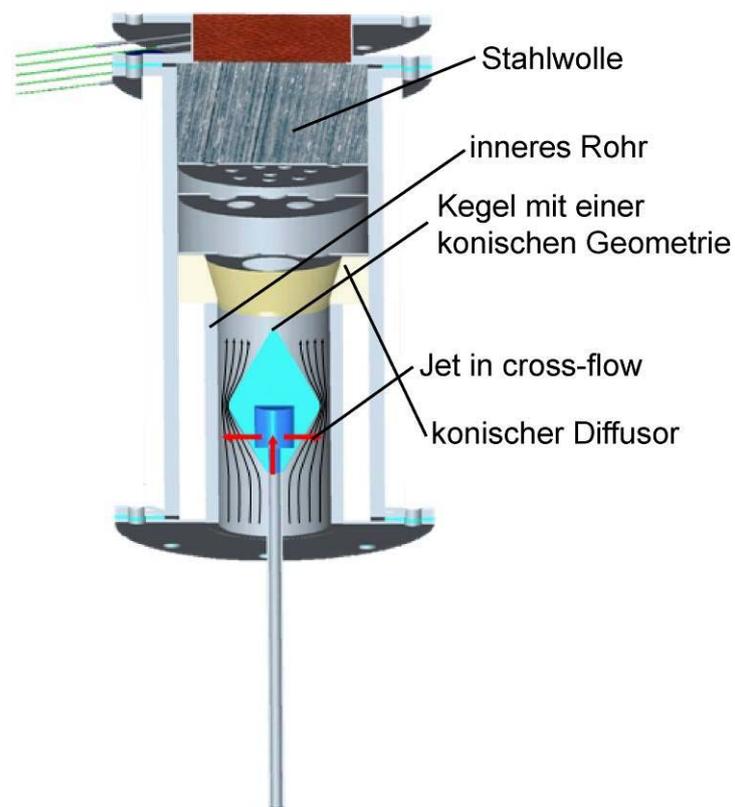


Abbildung 3.7: Konstruktion des statischen Mixers

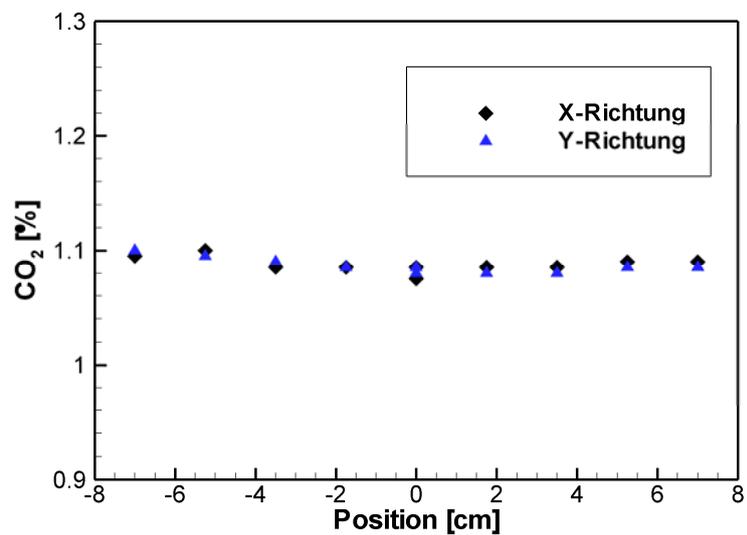


Abbildung 3.8: Konzentrationsprofile ($\lambda=1,5$; 80 kg/h Verbrennungsluft)

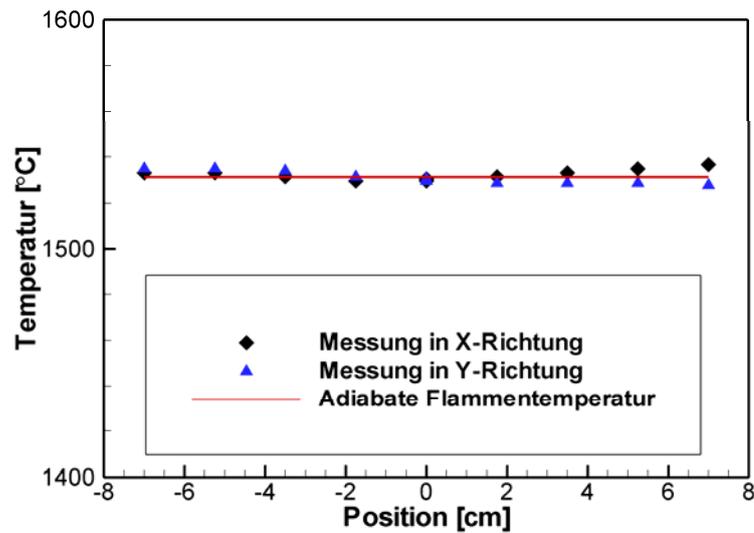


Abbildung 3.9: Adiabate Flammentemperatur des lokalen Gasgemisches ($\lambda=1,5$; 80 kg/h Verbrennungsluft)

3.3 Messmethoden

Der Versuchsaufbau lässt neben der Messung der Massenströme von Luft und Brenngas auch die Erfassung des Kühlwasserdurchflusses sowie des Druckes und der Temperatur an verschiedenen Stellen zu (Abb. 3.4). Im Abgasstrang ist eine Absaugsonde positioniert. Die nachfolgende Abgasanalyse dient dazu, die eingestellte Luftzahl zu kontrollieren, den Ausbrand zu messen und die Schadstoffemissionen zu ermitteln.

3.3.1 Aufnahme des axialen Temperaturprofils im Porenbrenner

Um den Verlauf der Verbrennung innerhalb der Verbrennungszone zu verfolgen, wurden an verschiedenen Stellen Thermoelemente in die Schwämme eingesetzt. Die Temperaturmessung in der Vormisch-/Vorwärmzone erfolgt über vier Thermoelemente vom Typ K (NiCr/Ni). Die Temperatur in der Reaktions-/Ausbrandzone wird über zwölf Thermoelemente Typ S ermittelt. Die eingesetzten Mantelthermoelemente Typ K (Fa. Electronic Sensor) hatten einen Durchmesser von

1 mm und Länge von 100 mm. Die Thermoelemente Typ S (Pt-PtRh10%) wurden mit Anwendung eines 1,8 mm dicken zwei-Loch keramischen Röhrchens (Fa. Buntenkötter Technische Keramik) gefertigt. Die Messperle der Thermoelementen Typ S ist nicht im keramischen Mantel eingekapselt, sondern befindet sich frei innerhalb der Verbrennungszone, um eine schnellere zeitliche Auflösung der Messung zu gewährleisten.



Abbildung 3.10: Brennkammer mit Stutzen zur Aufnahme der Thermoelemente

ermöglichen. Dies erforderte das Bohren von 2 mm dicken Löchern in die poröse Schwammstruktur hinein. Die begrenzte mechanische Stabilität der verwendeten Diamantbohrer bei wachsender Bohrtiefe verhinderte jedoch ein Positionieren auf der Brennerachse, so dass die Thermoelemente nur in einer Tiefe von 40 mm eingesetzt werden konnten. Die notwendige präzise Positionierung der Bohrungen erfolgte durch eine Bohrschablone. Die Abdichtung der Thermoelemente zur Brennrauminnenseite erfolgt über Schraubverbindungen der Firma Swagelock (siehe Abb. 3.10). Bedingt durch die Abmessung der Schraubverbindungen mussten die Thermoelemente S Typ in die Verbrennungszone in 3 Spalten mit 15 Grad Winkelabstand eingesetzt werden (siehe Abb. 3.10). Die axiale Positionierung der Thermoelemente erfolgte mit folgender Auflösung:

- Thermoelemente Typ K wurden mit dem Abstand von 12,5 mm in die Flammensperre eingesetzt, startend vom Einlass des feinporigen Schwammes
- Die ersten sechs Thermoelemente Typ S (angefangen vom Austritt des feinporigen Schwammes) haben einen Abstand in vertikaler Richtung von 10 mm. In diesem Bereich befindet sich die Flamme im stationären Betrieb des Brenners.

Aufgrund der beschränkten Zugänglichkeit und der Schwierigkeiten, die sich bei der mechanischen Bearbeitung einer porösen keramischen Schwammstruktur ergeben, wurden die Thermoelemente bei vergleichbaren Untersuchungen (z. B. [142, 143]) nur bis an den Rand des Porenkörpers herangeführt. Diese Vorgehensweise birgt jedoch die Gefahr, dass die gemessene Temperatur stark durch Wärmeverluste verfälscht bzw. verringert wird und damit nicht der die Stabilität charakterisierenden Verbrennungstemperatur entspricht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein erheblicher Aufwand betrieben, um die Positionierung von Thermoelementen innerhalb des Schwammes zu

- Die nächsten zwei Thermoelemente Typ S haben einen axialen Abstand von 17,5 mm.
- Die letzte vier Thermoelemente Typ S haben einen Abstand von 30 mm.

Eine schematische Darstellung der axialen Positionierung von Thermoelementen in Flammensperre und Verbrennungszone ist in Abb. 3.11 gezeigt. Die in Abb. 3.11 in mm gegebenen Abstände vom Eintritt der Flammensperre wurden zur Zeichnung der axialen Profile verwendet.

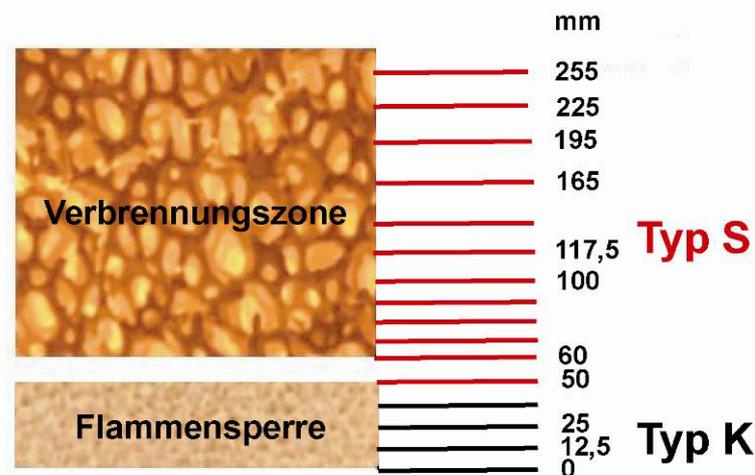


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung der axialen Positionierung der Thermoelemente in der Flammensperre bzw. in der Verbrennungszone

An dieser Stelle soll noch die mit wie oben beschrieben positionierten Thermoelementen ermittelte Temperatur erörtert werden. Die Messstellen der eingesetzten Thermoelemente befinden sich innerhalb der porösen Struktur. Es ist nicht möglich eindeutig zu bestimmen, ob eine Messperle eines Thermoelements einen festen Steg berührt. Auch wenn kein Kontakt zwischen der festen Phase und der Messstelle besteht, ist die Messperle von den festen Stegen umgeben. Deshalb existiert ein Wärmeaustausch zwischen den Stegen und der Thermoelementperle mittels Festkörper-zu-Festkörper-Strahlung. Dementsprechend kann spekuliert werden, dass die mit den Thermoelementen gemessenen Temperaturen einen Wert zwischen der Gas- und Schwammtemperatur annehmen.

3.3.2 Analyse des Rauchgases

In Abbildung 3.4 ist der schematische Aufbau der Probengasführung (Gasanalytik) zu sehen. Das Messgas wird über eine wassergekühlte Sonde mit einer Absaugöffnung, deren Durchmesser 2mm beträgt. Die Abgasprobe wurde 10 mm oberhalb der Schwammoberfläche abgesaugt (siehe Abb. 3.12). Eine Thermostatisierung der Sonde garantiert einerseits durch die schnelle Abkühlung des Messgases das Einfrieren des Reaktionszustandes und stellt andererseits sicher, dass der Rauchgastaupunkt nicht unterschritten wird. Danach wird das Messgas über einen regelbar thermostatisierten Heizschlauch (160 °C) dem Elektrogaskühler (Fa. BÜHLER, TYP EGK-4) zugeführt. Das den Kondensationstrockner verlassende trockene Gas (Taupunkt 3 °C) kann nun den Messgeräten zur Konzentrationsbestimmung von CO₂ und CO (Binos, Fa. Leybold-Heraeus) und O₂ (Oxynos, Fa. Leybold-Heraeus) zugeleitet werden. Vor dem Kondensationstrockner wurde ein Teil der Abgasprobe über einen zweiten Heizschlauch (160 °C) abgezweigt und dem CLD (Fa. Eco Physics) zur Bestimmung der NO- und NO₂-Konzentrationen zugeführt. Die für die verschiedenen Gase zur Verfügung stehenden Konzentrationsmessgeräte arbeiten nach den in Tabelle 3.4 aufgeführten Messprinzipien.

Tabelle 3.4: Messprinzipien der verwendeten Analysegeräte

Gaskomponenten	Messprinzip
CO ₂ , CO	Infrarotabsorption (NDIR)
O ₂	Paramagnetismus (Oxynos)
NO _x , NO ₂	Chemolumineszenz (CLD)

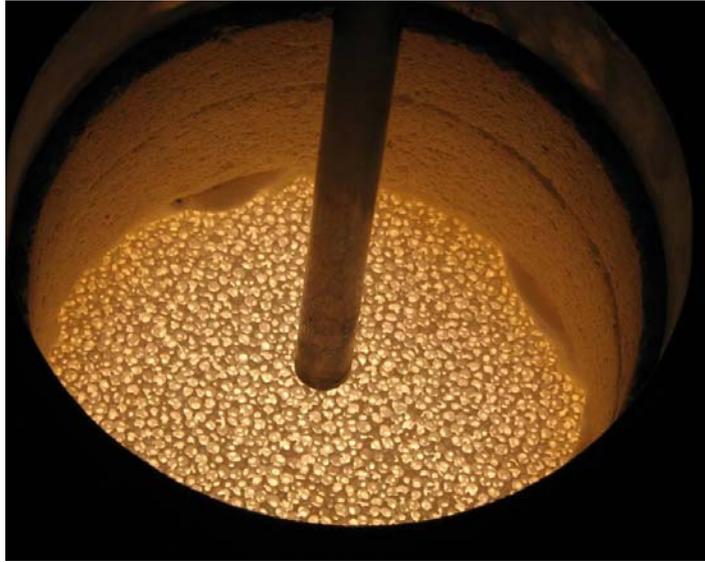


Abbildung 3.12: Aufnahme der Abgasprobe mit der wassergekühlten Absaugsonde (K02-Brenner)

3.3.3 Berührungslose Temperaturmessung

Der typische axiale Temperaturverlauf im untersuchten Porenbrenner (siehe Abb. 4.5) zeigt eine Absenkung der Temperatur in Richtung des Brennerausgangs aufgrund der Wärmeverluste durch die Abstrahlung vom glühenden Schwamm zur Umgebung. Um dieses Phänomen in dem im Rahmen dieser Arbeit vorgeschlagenen eindimensionalen Modell der Verbrennung in PIM (siehe Kapitel 4.2) berücksichtigen zu können, ist es zur Bestimmung der Auslassrandbedingung notwendig, die Temperatur des Schwammes am Brenneraustritt zu erfassen. Zu diesem Zweck wurde in der vorliegenden Arbeit eine berührungslose Temperaturmessung eingesetzt.

Grundprinzip der berührungslosen Temperaturmessung ist die Tatsache, dass alle Körper über dem absoluten Nullpunkt entsprechend ihrer Temperatur infrarote elektromagnetische Strahlung (Eigenstrahlung) aussenden. Die zur Messung dieser Strahlung eingesetzten Temperaturmessgeräte werden als Strahlungspyrometer, Infrarotthermometer oder Pyrometer bezeichnet. Dabei wird die von einem Messobjekt emittierte Strahlung über einen Detektor aufgefangen und in ein elektrisches Signal umgewandelt, welches von der nachfolgenden Elektronik als Temperaturwert ausgegeben wird. Die fundamentalen Zusammenhänge für die berührungslose Temperaturmessung können ausgehend vom Planckschen Strahlungsgesetz dargestellt werden. Dieses Gesetz beschreibt die von einem schwarzen Strahler emittierte Strahlungsintensität hinsichtlich der spektralen

Verteilung und kann mit folgender Gleichung formuliert werden:

$$i_s(\lambda, T) = c_1 \frac{1}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{c_2}{\lambda T}\right) - 1} \quad \left[\frac{W}{m^3}\right] \quad (3.2)$$

wobei $c_1 = 1,19106 \cdot 10^{-16} \text{ W m}^2$ und $c_2 = 0,014388 \text{ K m}$ die Strahlungskonstanten bezeichnen. Durch die Integration der spektralen Strahlungsintensität (Gl. 3.2) über den gesamten Wellenlängenbereich kann die spezifische Strahlungsflussdichte e_s von einem schwarzen Strahler in den Halbraum berechnet werden:

$$e_s(T) = \sigma_B T^4 \quad \left[\frac{W}{m^2}\right] \quad (3.3)$$

Die Gleichung 3.3 ist als Stefan–Boltzmannsches Gesetz bekannt wobei $\sigma_B = 5,670400 \cdot 10^{-8} \frac{W}{m^2 K^4}$ die Stefan–Boltzmann–Konstante bezeichnet. Für einen grauen Strahler wird das oben formulierte Gesetz zu:

$$\dot{q}(T) = \varepsilon(T) \sigma_B T^4 \quad \left[\frac{W}{m^2}\right] \quad (3.4)$$

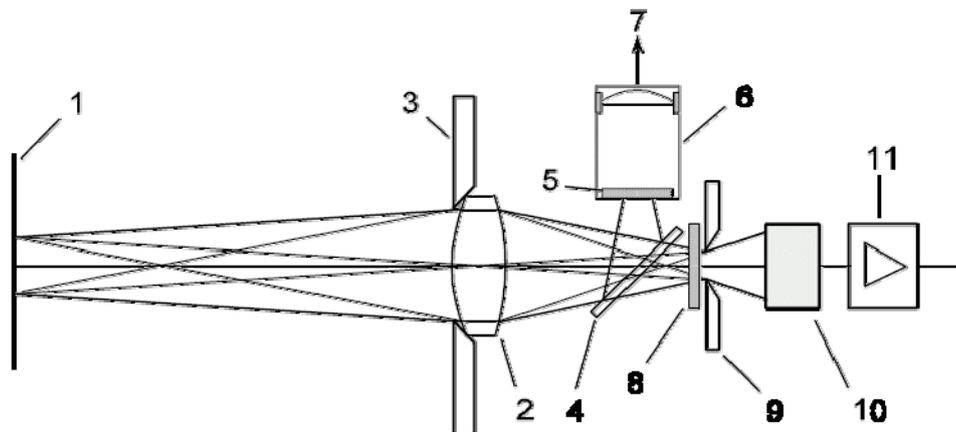
Der Emissionsgrad ε ist das Verhältnis der Strahlungsflussdichte eines Körpers zur Strahlungsflussdichte des schwarzen Strahlers gleicher Temperatur. Er ist die wichtigste Größe zur exakten pyrometrischen Bestimmung der Temperatur eines Objektes. Soll die tatsächliche Temperatur der Oberfläche eines Messobjektes mit einem Infrarot-Thermometer gemessen werden, sollte der Emissionsgrad des Messobjektes bekannt sein und am Gerät eingestellt werden. Der Emissionsgrad ist bei realen Körpern auch von der Wellenlänge bei der gemessen wird abhängig.

Da die Angabe des Emissionsgrades untersuchter Schwammstrukturen nicht verfügbar war, wurde in dieser Arbeit ein Quotientenpyrometer zur Messung der Schwammtemperatur am Brennerauslass eingesetzt. Mit dem Quotientenpyrometer (Verhältnispyrometer) wird der Strahlungsfluss vom Messobjekt bei zwei verschiedenen Wellenlängen gemessen und aus den Signalen ein Quotient gebildet. Daraus wird die Temperatur des Messobjektes errechnet und ausgegeben. Bei der Quotientenbildung kürzt sich der Emissionsgrad heraus (Gl. 3.4), d.h. die Messung wird unabhängig vom Emissionsgrad des Objektes. Die Wellenlängen liegen typischerweise nahe beieinander, um möglichst gleiche Emissionsgrade zu gewährleisten. Das Ausgangssignal ändert sich nicht, wenn das Messobjekt das Messfeld nicht vollständig ausfüllt oder wenn Störeinflüsse wie Rauch, Schwebstoffe

etc. auftreten, solange diese in beiden Wellenlängenbereichen gleich wirken. Sind die Emissionsgrade bei beiden Wellenlängen nicht gleich, so besteht die Möglichkeit, dies durch die Einstellung eines Quotientenkorrekturfaktors auszugleichen.

Abbildung 3.13 stellt schematisch die Optik eines Quotientenpyrometers dar. Die vom Messobjekt emittierte Strahlung wird nach dem Objektiv in zwei Strahlgänge mit unterschiedlicher Wellenlänge aufgeteilt, die jeweils mit einem eigenen Detektor und Verstärker erfasst werden. Das Verhältnis der beiden Signale wird von der Signalverarbeitungselektronik bestimmt und daraus wird die entsprechende Temperatur als Messergebnis berechnet.

Neben dem unbekanntem Emissionsgrad bestehen weitere Schwierigkeiten bei der Temperaturmessung eines in Feuerungsanlagen eingesetzten Festkörpers mittels Strahlungspyrometrie. Diese Problematik ist in Abb. 3.14 schematisch dargestellt. Ein häufig auftretendes Problem bei der Strahlungspyrometrie ist die Absorption der Strahlung in einem Medium (Luft, Gas, Fenster) zwischen Messobjekt und Strahlungsthermometer. Im vorliegenden Fall befindet sich das heiße Rauchgas zwischen dem Schwamm am Brenneraustritt und dem Pyrometer. Das Messobjekt ist hier der Festkörper, welcher im gesamten Wellenlängenbereich strahlt. Das Rauchgas (hauptsächlich H_2O , CO_2) absorbiert die Strahlung nur in bestimmten diskreten Wellenlängenbanden. Aus diesem Grund wird üblicherweise in der Praxis die Temperatur eines Festkörpers durch die Flamme hindurch mit einem monochromatischen Pyrometer gemessen, welches nur einen schmalen Wellenlängenbereich der Strahlung (Bandbreite $< 5\%$ der mittleren Wellenlänge von $3,9 \mu\text{m}$) verwendet. Bei dieser Wellenlänge von $3,9 \mu\text{m}$ findet keine Absorption in der Atmosphäre und im Rauchgas statt. Allerdings muss der Emissionsgrad des Messobjektes für die Anwendung eines monochromatischen Pyrometers vorgegeben werden.



- | | | |
|------------------------------|--------------------|------------------------|
| 1: Messobjekt | 5: Detektor 1 | 9: Detektor 2 |
| 2: Objektiv | 6: Verstärker 1 | 10: Verstärker 2 |
| 3: Aperturblenne | 7: Spektralfilter | 11: Signalverarbeitung |
| 4: Selektiver Strahlenteiler | 8: Messfeldblenden | |

Abbildung 3.13: Quotientenpyrometer [166]

Aus diesem Grund wurde zur Bestimmung der Schwammtemperatur am Brenneraustritt ein Quotientenpyrometer von Fa. Keller HCW (Typ Cella Temp PZ 40 AF 4/D) verwendet. Das Pyrometer misst die thermische Strahlung bei zwei nahe beieinanderliegenden Wellenlängen, $0,95\ \mu\text{m}$ und $1,05\ \mu\text{m}$. Unter der Annahme, dass sich der Emissionsgrad des untersuchten keramischen Schwammes in diesem engen Wellenlängenbereich nicht ändert, lässt sich bei der Bildung des Quotienten dieser unbekannte Schwammparameter kürzen. Diese Wellenlängen ermöglichen die Messung hoher Temperaturen im Bereich von $900 - 2400^\circ\text{C}$ und schalten die Absorption des Kohlendioxids im Rauchgas aus. Eine gewisse Strahlungsabsorption des Wasserdampfes im Rauchgas, welche bei den gegebenen Wellenlängen stattfindet, wird durch den Quotienten auch gekürzt. Der gleichmäßige Einfluss des Wasserdampfes bei den zwei untersuchten Wellenlängen muss aber durch die Verläufe der bei den jeweiligen Wellenlängen ermittelten Temperaturen überprüft werden (siehe Kapitel 4.1.5).

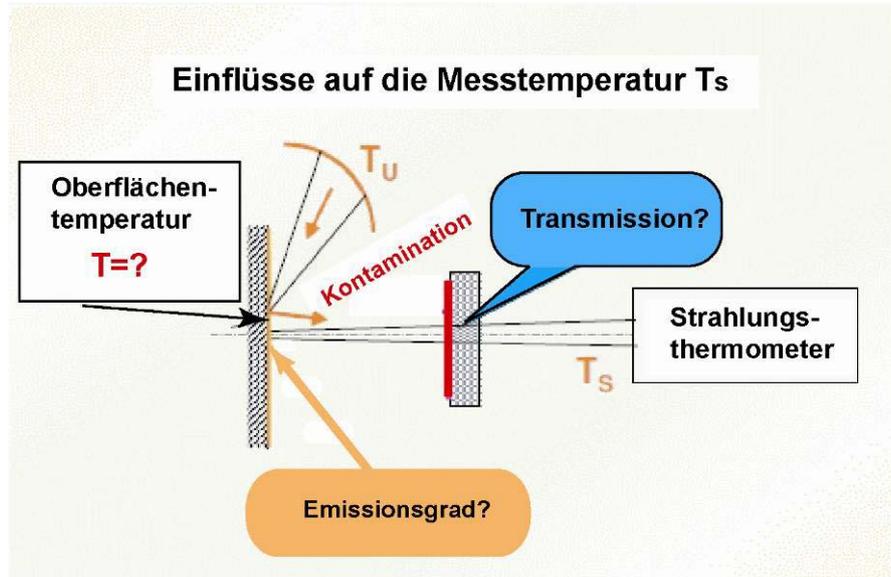


Abbildung 3.14: Schematische Darstellung der Aufgaben in der Strahlungspyrometrie [167]

Die Temperatur des Schwammes wurde für alle untersuchten Betriebsbedingungen am Brennertaustritt gemessen und die ermittelten Temperaturmesswerte wurden über eine PC-Schnittstelle und mit Hilfe der kommerziellen Mess- und Visualisierungssoftware Cella Mevis in Echtzeit dargestellt.

3.3.4 Ermittlung der Emissionsprofile innerhalb des Porenbrenners

Um die Informationen über den Verlauf des Verbrennungsprozesses im Porenbrenner zu gewinnen, wurde eine Versuchsanordnung ausgelegt mit dem Ziel die Abgasproben an verschiedenen axialen Positionen im Brenner aufnehmen zu können. Für diese Untersuchung wurde ein 10 PPI SiSiC Schwamm (Brennerkonfiguration K04 in Tab. 3.3) gewählt. Dazu wurde eine besondere Absaugsonde gefertigt, welche die Aufnahme der Probe tief im Schwamm ermöglicht (Abb. 3.15). Die in dieser Sonde eingebaute thermostatisierte Spitzenkühlung ermöglicht die Aufnahme der Abgasprobe bei konstanter und ausreichend tiefer Temperatur, so dass die weitere Reaktion in der Abgasprobe gequenchet wird. Die aufgenommene Abgasprobe ist dann, nach der Sonde weiter

durch den Heizschlauch zum Gasanalytiksystem geleitet, analog zu der in Kapitel 3.2.2 eingeführten Beschreibung. Darüberhinaus wurden die zum Einsetzen im Porenbrenner vorbereiteten Schwammstücke zusätzlich mit einem Diamantbohrer im Zentrum der auf einander gestapelten Proben axial gebohrt, um den Zugang für die Absaugsonde zu gewährleisten (Abb. 3.16). Mit dem axialen Loch in den Schwammproben - 8 Proben werden auf einander gestapelt um die Länge der Verbrennungszone von 200 mm zu erreichen - wird der Einbau der Schwämme in den Porenbrenner noch aufwändiger, da die Schwämme zusätzlich die präzise positionierte radiale Bohrungen zum Einsetzen von Thermoelementen besitzen (siehe Kapitel 3.2.1). Zur Ausschließung der Gasdurchströmung durch die axiale Bohrung wurde ein auf der unteren Seite geschlossenes keramisches Rohr (Außendurchmesser 10 mm, Innendurchmesser 7 mm) in die axiale Bohrung ($d=10,5$ mm) im Schwamm eingesetzt. Die Absaugsonde mit der Spitzenkühlung soll innerhalb des keramischen Rohres geführt werden. An bestimmten Positionen wurden Öffnungen ($d=2$ mm) in das keramische Rohr gebohrt, so dass nur an diesen definierten Stellen die Probe des Rauchgases abgesaugt werden kann. Damit ist die Auflösung des gemessenen Emissionsprofils durch die Position und Anzahl der seitlichen Bohrungen im keramischen Rohr bestimmt. Die Führung der Absaugsonde mit der Spitzenkühlung und die Bestimmung der axialen Position erfolgten über eine Traversierung.

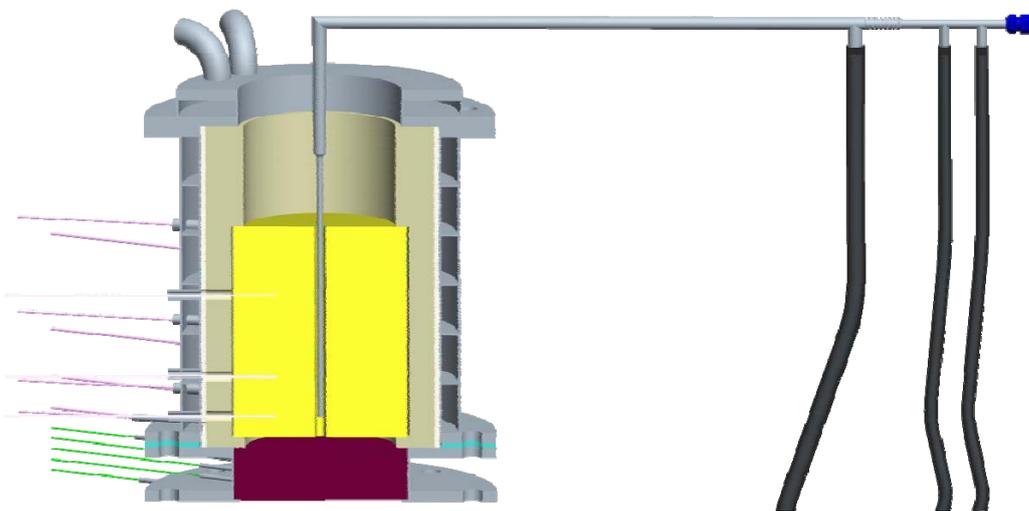


Abbildung 3.15: Versuchseinrichtung zur Ermittlung der Emissionsprofile innerhalb des Porenbrenners

Nach der genauen Justierung der Traverse war es möglich die Absaugsonde mit der Spitzenkühlung entlang der gesamten zur Messung vorgesehenen Länge des

keramischen Rohrs bzw. des Schwammes zu bewegen. Jedoch ergaben sich nach der Zündung und während des Betriebs des Porenbrenners mehrere Schwierigkeiten. Durch die thermische Ausdehnung des Schwammes und des keramischen Rohres wurden das zuvor präzise koaxial positionierte Rohr und die Sonde leicht verschoben, was dazu führte, dass sich die Sonde nicht mehr entlang der gesamten Rohrlänge bewegen konnte. Darüberhinaus wurde das keramische Rohr durch die vielen nebeneinander positionierten seitlichen Bohrungen zur Absaugung der Abgasprobe mechanisch abgeschwächt, was zur schnellen Rissbildung und zum Bruch des Rohres unter den hohen Verbrennungstemperaturen führte. Aus den oben genannten Gründen wurden die Konzentrationsmessungen im Abgas innerhalb des Porenbrenners ohne keramisches Rohr durchgeführt. Somit besteht die Gefahr, dass das Strömungsfeld bzw. der Verbrennungsprozess innerhalb der großen axialen Bohrungen im Schwamm verändert wird und nicht der Realität der innerhalb des Schwammes herrschenden Phänomene entspricht. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dass das Rauchgas nicht nur am bestimmten eingestellten Punkt abgesaugt wird sondern auch aus einem größeren Bereich in der Umgebung des Sollpunktes. Dementsprechend, soll die hier vorgeschlagene Methode zur Untersuchung der Verbrennungszone weiter optimiert werden. Dennoch ermöglichen die durch diese Vorgehensweise gewonnenen Messdaten einen guten qualitativen Einblick in die Abläufe der Verbrennungsreaktionen in einem Porenbrenner (siehe Kapitel 4.1.6).

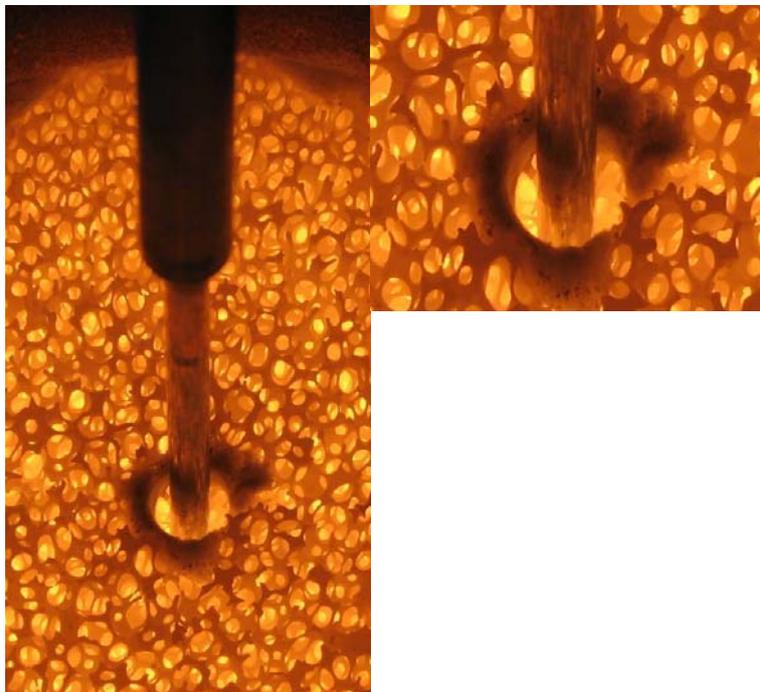


Abbildung 3.16: Messung des Emissionsprofils innerhalb eines 10 PPI SiSiC Schwammes

3.4 Beschreibung der Versuchsdurchführung

3.4.1 Druckverlustmessung

Der Druckverlust ist ein zur Entwicklung und Vorplanung der chemischen Industrieprozesse wesentlicher globaler Parameter der Reaktorsysteme mit packungsähnlichen Strukturen wie z.B. bei festen Schwämmen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Druckverlust für diverse untersuchte Schwämme als Parameter der gesamten Brennkammer ermittelt. Die Druckdifferenz wurde mit einem direkt vor der Flammensperre eingesetzten Drucktransmitter (Fa. GE GmbH, Typ PTX 1400) bestimmt und bezieht sich immer auf den feinporigen (Flammensperre) und den großporigen Schwamm (Reaktionszone). Bei dieser experimentellen Untersuchung wurde der Luftstrom stufenweise im Messbereich erhöht und dabei wurde der Volumenstrom der Luft, die Temperatur- und der Druck aufgenommen. Als Referenzdruck diente der Umgebungsdruck. Da es auf Grund der hohen Temperaturwechsel bei der Verbrennung zu Materialschädigungen des keramischen Schwammes kommen kann, wurden die Druckverlustmessungen vor der Stabilitätsmessung durchgeführt.

Da die Anlage nicht für die Charakterisierung der Schwämme allein ausgelegt ist, sondern zur Druckverlustmessung der gesamten Brennkammer dient, lieferten diese Messungen keine genaue quantitativen Angaben für den jeweiligen Schwamm. Um einen qualitativen Vergleich zwischen untersuchten grobporigen Schwämmen zu bekommen, wurde auch der Druckverlust der Flammensperre allein gemessen. Das Auswertungsverfahren zur Ermittlung der entsprechenden Druckverlustkurven ist in Abschnitt 4.1.1 näher beschrieben.

3.4.2 Stabilitätsuntersuchung

Das vorrangige Ziel der vorliegenden Untersuchungen ist die Bestimmung der Flammenstabilität. Bezüglich der experimentellen Erfassung der Flammenstabilitätsgrenzen existieren zwei alternative Messverfahren wie in Abb. 3.17 schematisch angedeutet. Die Abbildung 3.17 zeigt das für die Brennerkonfiguration K01 (siehe Tab. 3.3) und Luftvorwärmtemperatur von 25°C ermittelte Stabilitätsdiagramm. Als obere Stabilitätsgrenze wird derjenige Durchsatz bezeichnet, bei welchem sich die Flamme gerade noch innerhalb der

Verbrennungszone des Systems befindet, bevor sie, bei einer weiteren Durchsatzsteigerung, aus der Brennkammer heraus getragen wird. Dementsprechend wird die Flamme in der jeweiligen Brennerkonfiguration für die Betriebsbedingungen oberhalb der Stabilitätskurve instabil. Die Betriebspunkte auf der Stabilitätsgrenze können entweder durch die Erhöhung der thermischen Leistung bei einer bestimmten Luftzahl oder durch die Erhöhung der Luftzahl bei einer konstanten thermischen Leistung ermittelt werden. Das zweite Verfahren, welches das effektivere darstellt, wurde in der vorliegenden Arbeit eingesetzt.

Zur experimentellen Bestimmung der Stabilitätsgrenze wurde in jedem Experiment bei gegebenen Betriebsbedingungen (Vorwärmtemperatur der Luft, thermische Leistung) und eingestellter Luftzahl die Flamme gezündet. Nach dem Zünden und Aufwärmen stabilisiert sich die Flamme bei den gegebenen Betriebsbedingungen an einer bestimmten Stelle im Porenbrenner. Bei konstanter Leistung wird die Luftzahl in 0,05er Schritten erhöht, in dem der Luftdurchsatz entsprechend eingestellt wird. Zwischen zwei Schritten wurde die Flamme für eine bestimmte Zeitdauer sich stabilisieren lassen. Während dieser Zeit stellt sich ein stationäres Temperaturprofil ein. Die Erhöhung der Luftzahl resultiert in einer Absenkung von sowohl laminarer Brenngeschwindigkeit als auch der Verbrennungstemperatur. Bei einer bestimmten Luftzahl und für die gegebenen Betriebsbedingungen wird die Geschwindigkeit des Frischgasgemisches höher als die Brenngeschwindigkeit und die Flamme wandert langsam in Richtung des Brennerausganges. Dieses Phänomen ist als Abblasen definiert.

Die Flammenstabilitätsmessung basiert auf der Ermittlung des axialen Temperaturprofils im Brenner durch die innerhalb des Schwammes eingesetzten Temperatursensoren. Abbildung 3.18 zeigt beispielhaft die in der Brennerkonfiguration K04 gemessenen Temperaturprofile für den untersuchten Luftzahlbereich bei einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C. Die gestrichelte Linie bezeichnet die momentane Position der langsam wanderten Flammenfront. Bei diesem Betriebspunkt ist die Flamme als instabil angenommen. Die höchste Luftzahl, bei welcher die Flamme immer noch stabil brennt, kennzeichnet die Stabilitätsgrenze und wird für die Bildung des Stabilitätsdiagramms verwendet.

Im Gegensatz zur Verbrennung ohne Porenkörper ist es bei der Verbrennung in einem Porenbrenner sehr schwierig, eine definierte Stabilitätsgrenze anzugeben, da die Flamme bei einer Erhöhung des Durchsatzes nicht schlagartig erlischt, sondern langsam aus dem Porenkörper ausgetragen wird. Auf Grund von Strukturinhomogenitäten ist während dieser Phase das radiale Temperaturprofil nicht mehr gleichmäßig. Als eine mögliche charakteristische Größe zur Festlegung der Abblasegrenze wird daher in der Literatur derjenige Durchsatz angegeben, bei welchem ein gewähltes Thermoelement vollständig von kaltem Medium umschlossen ist [143].

Eine weitere Möglichkeit der Definition der Abblasegrenze basiert auf der Auswertung der Abgasanalyse. Erhöht sich die Konzentration von Kohlenmonoxid (CO) im Abgas bei Erhöhung des Durchsatzes plötzlich, dann ist die Verbrennung nicht mehr vollständig und somit die Stabilitätsgrenze erreicht. Im Fall des Porenbrenners ist es jedoch nicht möglich den genauen Zeitpunkt der Erhöhung der CO Konzentration in der Reaktionszone durch die Analyse des Abgases am Brenneraustritt zu detektieren. Der Brennstoffabbrand findet zwar nur in einer relativ dünnen Zone im Schwamm statt, die Konversion von CO zu CO₂ erfolgt dagegen in einer relativ breiten Ausbrandzone. Diese befindet sich jedoch trotz der Annäherung an die Abblasegrenze weiterhin innerhalb des heißen Festkörpers der Schwammstruktur. Es wäre daher notwendig das Abgas direkt aus dem Bereich der Reaktionszone abzusaugen. Dies ist jedoch technisch sehr aufwändig, da sich die Flamme nicht immer an der gleichen Position befindet.

Die zuvor beschriebenen Stabilitätsuntersuchungen wurden für die jeweilige Brennerkonfiguration für unterschiedliche Vorwärmtemperaturen der Verbrennungsluft und thermischen Leistungen durchgeführt. Alle untersuchten Brennerkonfigurationen und Betriebsbedingungen sind in Tabelle 3.3 aufgelistet.

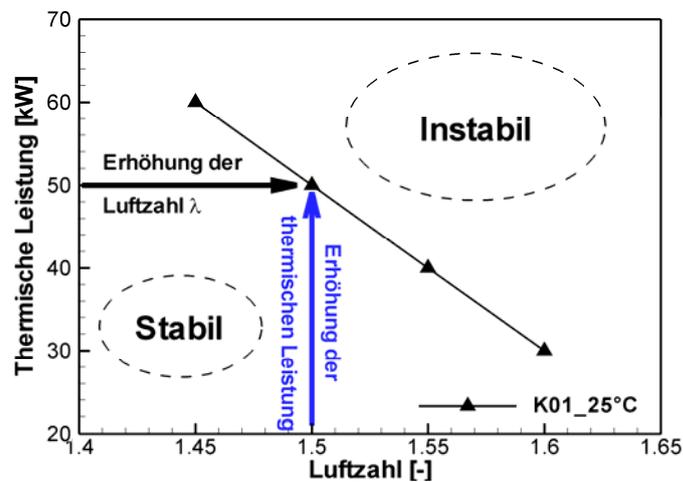


Abbildung 3.17: Schematische Darstellung möglicher Vorgehensweisen zur experimentellen Bestimmung der Flammenstabilitätsgrenzen

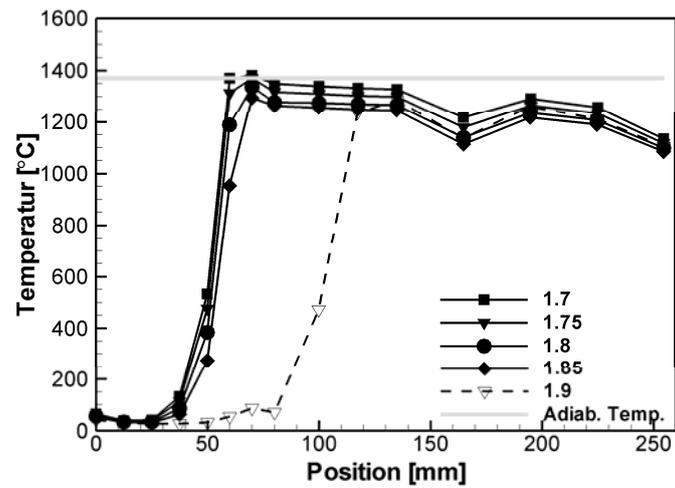


Abbildung 3.18: Schematische Darstellung möglicher Vorgehensweisen zur experimentellen Bestimmung der Flammenstabilitätsgrenzen

4 Ergebnisse und Interpretation

In den folgenden Kapiteln werden die erhaltenen Ergebnisse dargestellt und mit Hilfe der im Kapitel 2 eingeführten theoretischen Grundlagen diskutiert. Dieses Kapitel besteht aus zwei Hauptteilen: experimentelle und numerische Untersuchungen. Im ersten Teil werden die, aus den experimentellen Untersuchungen der Verbrennung in einem mit einer keramischen Schwammstruktur bestückten Porenbrenner, ermittelten Ergebnisse vorgestellt.

Im Anschluss daran wird ein eindimensionales numerisches Modell zur Beschreibung der Verbrennung in festen Schwämmen vorgeschlagen. Anhand der dabei ermittelten numerischen Ergebnisse können Aussagen über die relative Wichtigkeit verschiedener Transportmechanismen für die Flammenstabilisierung gemacht werden.

4.1 Experimentelle Untersuchungen der Verbrennung in keramischen Schwämmen

In diesem Kapitel werden zunächst die ermittelten Druckverlustdaten als ein qualitativer Ausdruck der Schwammgeometrie interpretiert und für den Vergleich der untersuchten Strukturen eingesetzt. Im Anschluss daran werden Ergebnisse aus Experimenten mit reagierender Strömung präsentiert. Eines der wichtigsten Merkmale der Verbrennung in porösen inerten Medien ist das charakteristische, räumlich stark ausgedehnte Temperaturprofil mit einer Temperaturspitze, die über der adiabaten Flammentemperatur liegt. In diesem Zusammenhang werden zunächst die gemessenen Temperaturprofile behandelt. Im Interesse der Optimierung von Porenbrennern werden dann die experimentell ermittelten Stabilitätsdiagramme unter Variation der Struktur- und Materialparameter dargestellt.

4.1.1 Druckverlust

Der charakteristische Druckverlust der einzelnen Anlagenkomponenten stellt eine sehr wichtige Kenngröße in der Reaktionstechnik dar und bestimmt die Gebläseleistung die im System aufgewendet werden muss. Dies gilt insbesondere für poröse Medien, unter denen sich Schwämme durch besonders geringen Druckverlust auszeichnen. Der Druckverlust spiegelt dabei die Strukturgeometrie eines porösen Mediums wieder und ist hauptsächlich durch die offene Porosität und die spezifische Oberfläche bestimmt. Darüber hinaus weisen unterschiedliche Schwammproben vom gleichen Typ (PPI-Zahl und Porosität), auch desselben Herstellers, starke Abweichungen bezüglich des Druckverlustes auf [168]. Der Grund dafür liegt vor allem in durch den Herstellungsprozess bedingten Strukturinhomogenitäten, die sich hauptsächlich in Form von überwiegend für die Durchströmung versperrten Regionen (z. B. durch geschlossene sog. Fenster) manifestieren [23].

Die Druckverlustmessungen wurden so wie im Kapitel 3.3.1 beschrieben durchgeführt. Die dabei ermittelten Ergebnisse sind zusammengefasst in Abbildung 4.1 dargestellt. Ein vor der Flammensperre installierter Drucktransmitter liefert eine integrale Druckverlustmessung für die gesamte Brennkammer. Aufgrund des vergleichsweise großen Druckverlustes über beide porösen Körper kann die Annahme getroffen werden, dass der Druckverlust über der Brennkammer nahezu nur durch die Flammensperre und den Schwamm in der Reaktionszone verursacht

wird. Dies gilt dann, wenn der Druckabfall aufgrund der geringen Querschnittsminderung entlang des dünnen, zwischen zwei Schwammsektionen positionierten Rings und aufgrund der Reibung entlang der inneren Wand vernachlässigbar ist. Zwecks eines qualitativen Vergleichs der untersuchten Schwämme bezüglich des Druckverlusts wurde ein Versuch durchgeführt, die Druckverlustwerte der Flammensperre und des großporigen Schwammes aus der integralen Druckverlustmessung zu entkoppeln. Deshalb wurde zusätzlich der Druckverlust über der Flammensperre allein vermessen. Die so ermittelten Messdaten für den feinporigen Schwamm (Flammensperre) wurden zur Auswertung durch eine in Form einer Forchheimer-Gleichung (Gl. 2.14) gegebenen Anpassung beschrieben; sie sind in Abbildung 4.2 gezeigt.

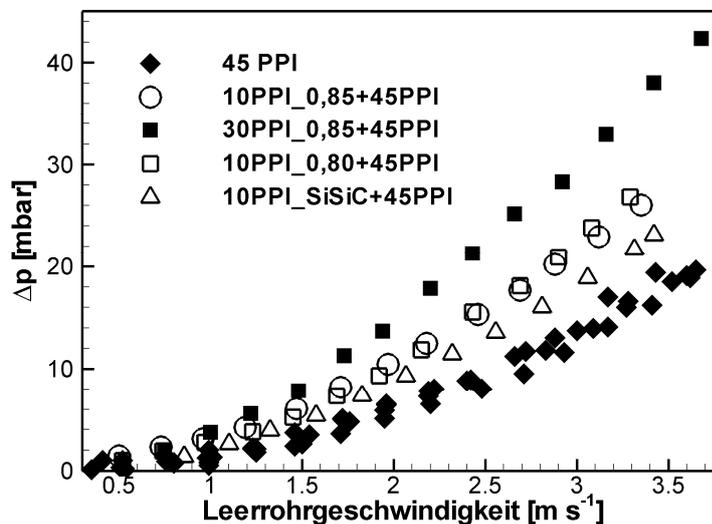


Abbildung 4.1: Die gemessene Druckverlustwerte in diversen Brennerkonfigurationen

Da der Druckverlust eine additive Größe ist, ist es möglich, von den Druckverlustdaten für die gesamte Brennkammer den Druckverlust der Flammensperre zu subtrahieren, um daraus dann die Druckverlustwerte für den jeweiligen großporigen Schwamm zu erhalten. Die so ermittelten Daten sind als längenbezogener Druckverlust in Abhängigkeit von der Leerrohrgeschwindigkeit in Abbildung 4.3 dargestellt.

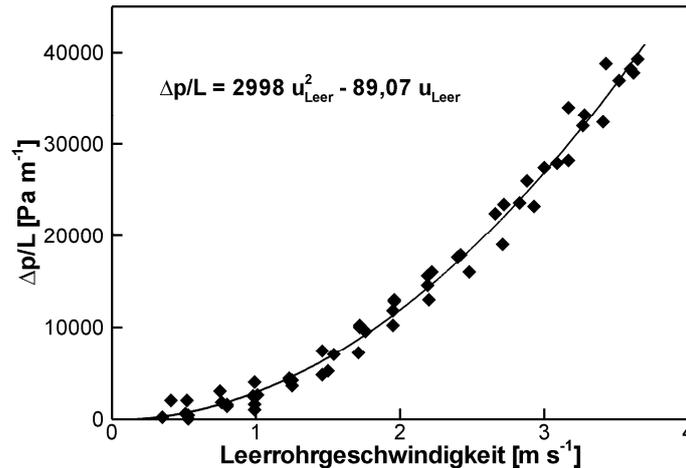


Abbildung 4.2: Der längenbezogene Druckverlust in der Flammensperre in Abhängigkeit der Leerrohrgeschwindigkeit: Messung und Anpassung in Form einer Forchheimer-Gleichung

Aus Abbildung 4.3 ist es deutlich zu ersehen, dass der Druckverlust in Schwämmen gleicher nomineller Porosität mit steigender Porendichte zunimmt. Dieser Effekt kann mit den stärkeren Reibungseffekten begründet werden, die bei den Schwämmen höherer Porendichte aufgrund ihrer größeren spezifischen Oberfläche vorliegen. Die beobachtete Tendenz stimmt mit der Aussage der empirischen Gleichungen 2.15, 2.16 und 2.17 überein. Der gemessene Druckverlust in einem SiSiC-Schwamm mit der Porendichte 10 PPI ist geringer als der der entsprechenden Schwammprobe aus Aluminiumoxid. Neben dem geringen Unterschied zwischen nominellen Porositäten dieser Schwämme (0,85 und 0,87, siehe Tabelle 3.1) resultiert der unterschiedliche Druckverlust aus den unterschiedlichen morphologischen Eigenschaften (Porengröße, spezifische Oberfläche) (Kapitel 2.1.2.1) und Strukturinhomogenitäten in Form verdickter Stegen bzw. geschlossener Fenster. Die Unterschiede in der Strukturtopologie der untersuchten Schwämme gleicher Porendichte sind die Folge der unterschiedlichen Herstellungsprozesse bei den jeweiligen Herstellerfirmen. Zusätzlich treten die Strukturinhomogenitäten aufgrund des Replika-Herstellungsverfahrens (siehe Kapitel 2.1.1.1) auf. Bei diesem Verfahren stellt das Abpressen des überschüssigen keramischen Schlickers einen kritischen Punkt dar, wodurch sich die Bereiche mit geschlossenen Fenstern in der Schwammgeometrie ergeben. Die gleiche Tatsache ist für die Unterschiede im spezifischen Druckverlust der Proben gleichen Typs und Herstellers verantwortlich. Eine Änderung in der Schwammporosität ist mit einer Änderung der für die Strömung freien Querschnittsfläche gleichbedeutend, was wiederum Einfluss auf den Betrag der interstitiellen Geschwindigkeit zur Folge hat. Deshalb hat die Porosität große Auswirkung auf den Druckverlust. Trotzdem wurde kein Unterschied beim Druckverlust zwischen zwei 10 PPI Schwämmen aus

Aluminiumoxid mit der Porosität 0,85 bzw. 0,80 detektiert. Die Herstellung einer gleichmäßig offenporigen Schwammstruktur wird immer kritischer mit Absenkung der gewünschten Porosität. Aus diesem Grund sind die Schwämme geringerer Porosität oft mit vielen geschlossenen Fenstern charakterisiert. Dies resultiert in eine Erhöhung des Druckverlustes [23]. Damit könnte der mit dem vorhandenen Drucksensor nicht messbare Unterschied im Druckverlust für die zwei untersuchten Porositäten begründet werden.

Wie schon im Kapitel 3.3.1 besprochen, ist die Druckverlustmessung als integrale Charakterisierung des gesamten Brenners und nicht zur Charakterisierung einzelner Schwämme vorgesehen. Die Ermittlung der einzelnen Druckverlustkurven für die grobporigen Schwämme ist mit mehreren, sich addierenden Mess- und numerischen Fehlern (aus der Datenanpassung für die Flammensperre) behaftet. Ein Vergleich zwischen den hier gewonnenen Druckverlustdaten und den entsprechenden experimentellen Ergebnissen von Richardson et al. [10] ist in Abb. 4.4 gegeben. Zusätzlich sind die von Habisreuther et al. [23] gewonnenen Daten aus der numerischen Strömungssimulationen in aus MRI-Daten rekonstruierten Mikrostrukturen (siehe Kapitel 2.1.1.2) dargestellt. Die hierbei verwendeten MRI-Messungen wurden für die Schwämme gleicher nomineller Angaben (Porendichte, Porosität und Werkstoff) und vom gleichen Hersteller wie die in der vorliegenden Arbeit eingesetzten Schwämme durchgeführt. Die unterschiedlichen Linien für den gleichen Schwammtyp, die die numerischen Daten darstellen (Abb. 4.4), bezeichnen die Druckverlustkurven einer gleichen

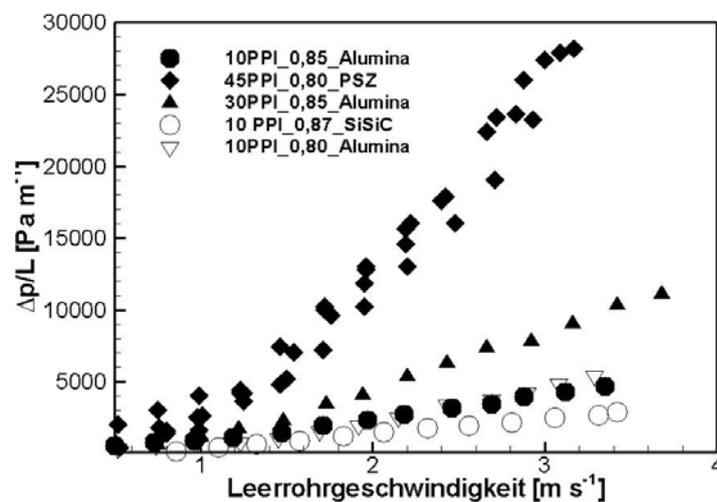


Abbildung 4.3: Der längenbezogene Druckverlust im jeweilig untersuchten Schwamm in Abhängigkeit der Leerrohrgeschwindigkeit

Schwammprobe in verschiedenen Strömungsrichtungen. Die hiermit demonstrierte Abhängigkeit des Druckverlusts von der Strömungsrichtung deutet auf die starke Auswirkung der Strukturtopologie hin. Trotz der zuvor diskutierten Ungenauigkeiten des in dieser Untersuchung verwendeten Messverfahrens ist eine gute Übereinstimmung mit den vergleichbaren Literaturdaten zu beobachten. Die hier gewonnenen Messdaten liegen im Bereich der Streuung von Literaturdaten trotz der durchgeführten Anpassung für die Flammensperre.

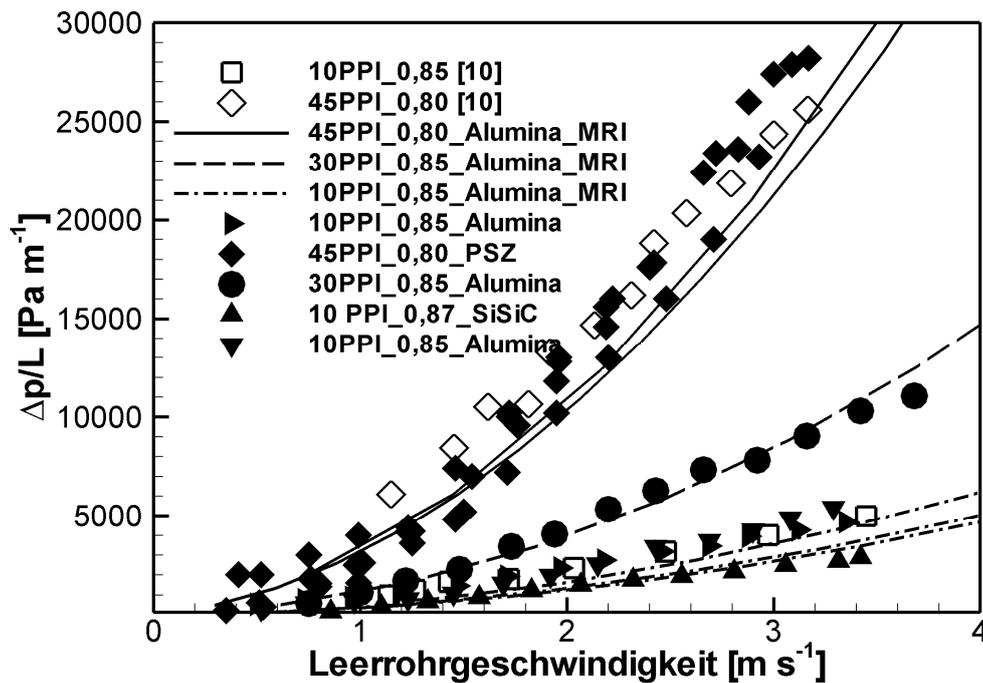


Abbildung 4.4: Vergleich der gemessenen Druckverlustwerten mit den experimentell [10] und numerisch [23] ermittelten Literaturdaten

4.1.2 Temperaturprofil und Flammendicke

Eines der wichtigsten Merkmale einer Flamme ist das charakteristische Temperaturprofil, welches im Detail im Kapitel 2.2.1 diskutiert wurde. In einer Gasflamme finden die chemischen Umwandlungen von Brennstoff und Oxidationsmittel in zahlreiche intermediäre Spezies in der dünnen Reaktionszone statt. Durch den hohen vorliegenden Temperaturgradienten wird der Wärmetransport in Richtung des ankommenden Gasgemisches getrieben, womit die Edukte auf die Zündtemperatur erwärmt werden. Aufgrund der schlechten

Wärmetransporteigenschaften eines Gases ist ein steiler Temperaturgradient nötig, um einen ausreichenden Wärmetransport zur Erwärmung der Edukte bereitzustellen. Ein so steiler Temperaturgradient wird durch die Wärmefreisetzung in einer dünnen Flammenfront erstellt. Der stark intensivierter Wärmetransport bei der Verbrennung in einem Schwamm, der sich aus den hervorragenden Wärmetransporteigenschaften des Festkörpers in der Reaktionszone ergibt, hat eine verdickte Flammenfront zur Folge. Darüber hinaus bewirkt der erhöhte Massentransport aufgrund der Strömungsdispersion (siehe Kapitel 2.1.2.4) eine Verflachung der Temperatur- und Konzentrationsprofile, wie im Kapitel 4.2.3 erläutert. Eine Flamme, die sich mit einer hohen Flammendicke charakterisiert, weist eine entsprechend höhere Flammenstabilität auf, d.h. ein solcher Brenner kann mit höheren Gasgeschwindigkeiten betrieben werden, da genug Wärme entgegen der Strömungsrichtung transportiert werden kann, um den Verbrennungsprozess durch das Erreichen der Zündtemperatur an der bestimmten Stelle zu stabilisieren.

Abbildung 4.5 zeigt ein aus der Messung im 10 PPI SiSiC-Schwamm ermitteltes Temperaturprofil bei einer Luftzahl von 1,7 und einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C im Vergleich mit dem entsprechenden Temperaturprofil einer laminaren Gasflamme. Die Daten für die laminare Flamme wurden aus einer CHEMKIN basierten numerischen Simulation unter Anwendung des PREMIX-Code ermittelt [120]. PREMIX löst die stationären Transportgleichungen für Masse, Energie und Spezies-Massenbrüche für die spezifizierten thermodynamischen Bedingungen am Einlass. Aus dem gemessenen Temperaturprofil ist es zu ersehen, dass die Flamme in einem 10 PPI SiSiC-Schwamm bei den gegebenen Bedingungen ca. 3 cm dick ist (grauer Bereich in Abb. 4.5). Im Gegensatz dazu weist die laminare Gasflamme bei den gleichen Bedingungen eine Flammendicke von nur ca. 1 mm. Somit wurde eine starke Verdickung der Flamme in einem Porenbrenner auch experimentell detektiert, worauf, wie zuvor diskutiert, die Erhöhung der Umwandlungsrate und so der Brenngeschwindigkeit basiert. Dieser Effekt der Flammenverdickung und somit der Erhöhung der Brenngeschwindigkeit ist stark von den Wärmetransporteigenschaften des angewandten Schwammes abhängig und kann durch die Variation der Schwammparameter manipuliert werden.

Darüber hinaus kann beobachtet werden, dass im Experiment eine höhere Temperatur als die entsprechende adiabate Flammentemperatur erfasst wurde. Zusätzlich wird betont, dass die gemessenen Temperaturwerte eine Temperatur zwischen der des Gases und der des Festkörpers darstellen (siehe Kapitel 3.2). Da die in den Schwamm eingesetzte Thermoelementperle völlig umschlossen von hochstrahlenden festen Stegen ist, kann man annäherungsweise die gemessene Temperatur als Schwammtemperatur bezeichnen (siehe Kapitel 3.2.1). Demzufolge liegt das Gastemperaturmaximum bei noch höheren Werten als die in Abb. 4.5 dargestellte Temperatur. Das experimentell detektierte Phänomen nennt sich superadiabatische oder Überschussenthalpie-Flamme und ergibt sich aus der

Wärmereizirkulation durch den Festkörper ohne Verdünnung der Edukte (siehe Kapitel 2.2.3). Solche erhöhten lokalen Verbrennungstemperaturen sind für die Erhöhung der Brenngeschwindigkeit verantwortlich, worauf die Flammenstabilisierung in einem Porenbrenner beruht.

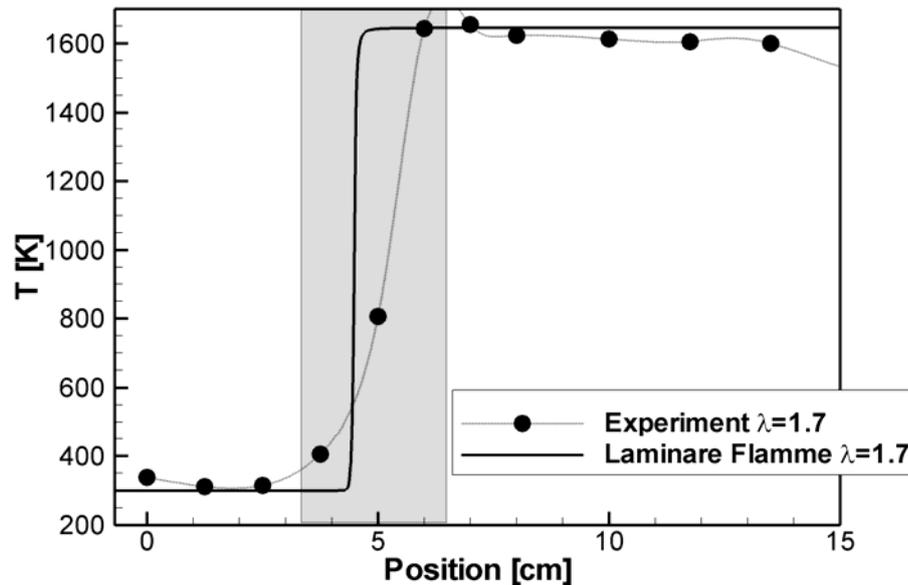


Abbildung 4.5: Experimentell ermittelte Temperaturprofil in K04-Brenner im Vergleich zu der laminaren Flamme ($\lambda = 1,7$; $T_{vw} = 25^\circ\text{C}$)

4.1.3 Flammenstabilität

Die Flammenstabilitätsuntersuchungen wurden anhand der in Kapitel 3.3.2 beschriebenen Vorgehensweise für alle in Tabelle 3.3 gelisteten Brennerkonfigurationen unter Variation der Luftvorwärmtemperatur und der thermischen Leistung durchgeführt. Bei den vorgegebenen Prozessparametern (thermische Leistung, Luftvorwärmtemperatur) wurde die Luftzahl während der experimentellen Stabilitätsuntersuchung variiert, die Messung lieferte eine Reihe der entsprechenden axialen Temperaturprofile. Die gemessenen Temperaturprofile für diverse Brennerkonfigurationen dienten zur Bestimmung der Stabilitätsgrenzen wie in Kapitel 3.3.2 erläutert wurde. Die Flammenstabilitätsgrenzen für die jeweilige untersuchte Brennerkonfiguration sind als Funktion der thermischen Leistung und der Luftzahl für die entsprechende untersuchte Vorwärmtemperatur der Verbrennungsluft im Stabilitätsdiagramm dargestellt. Ein Beispiel solcher Stabilitätsdiagramme ist in Abb. 4.6 zu sehen. Abb. 4.6 zeigt ein für die

Brennerkonfiguration K01 ermitteltes Stabilitätsdiagramm im Vergleich zu den entsprechenden Daten einer laminaren Gasflamme. Die laminare Brenngeschwindigkeit S_f wurde über die Simulation einer eindimensionalen Vormischflamme bestimmt. Die Simulationen wurden mit dem Programm PREMIX aus der Programmbibliothek CHEMKIN durchgeführt [120]. Hierbei wurden für ein Methan/Luft-Gemisch die Einlassrandbedingungen entsprechend der Luftzahl sowie der Vorwärmtemperatur variiert. Die Reaktionsterme in den Spezieserhaltungsgleichungen wurden anhand eines detaillierten Reaktionsmechanismus nach Egolfopoulos [121] berechnet. Die entsprechende, im Stabilitätsdiagramm dargestellte, thermische Leistung für die laminare Flamme wurde basierend auf der Brennergeometrie (Schwammdurchmesser) berechnet.

Das in Abb. 4.6 exemplarisch dargestellte Stabilitätsdiagramm zeigt eine im Vergleich zur laminaren Flamme erhebliche Erhöhung der Flammenstabilität in einem Porenbrenner. Dieses Phänomen wurde für alle untersuchten Brennerkonfigurationen und Bedingungen detektiert und ist auf den nachfolgenden Stabilitätsdiagrammen (Abb. 4.9-4.15) zu sehen. Der Betrag des in einem Porenbrenner festgestellten Stabilisierungseffektes nähert sich der Größenordnung aerodynamisch stabilisierter Diffusionsflammen [169], jedoch ohne begleitende hohe Schadstoffemissionen der letzteren. In Abb. 4.7 ist erkennbar, dass die maximale erreichbare Leistungsdichte einer Gleichdrall-Diffusionsflamme gleicher Größenordnung ist wie die des K05-Brenners. Dies gilt im Besonderen für die höheren Luftzahlen.

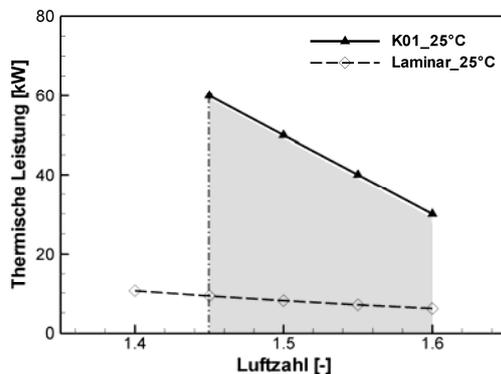


Abbildung 4.6: Stabilitätsdiagramm des K01-Brenners ($T_{VW}=25^\circ\text{C}$)

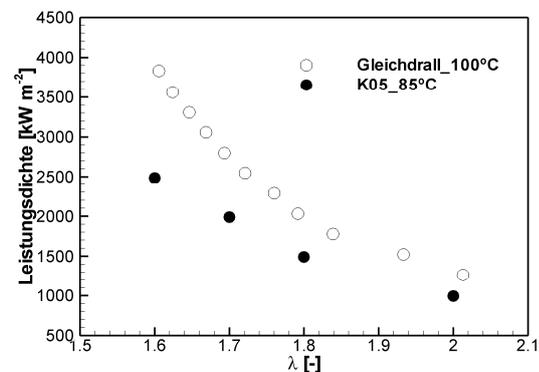


Abbildung 4.7: Der Flammenstabilisierungseffekt: Vergleich zwischen der Gleichdrall-Diffusionsflamme [169] und dem K05-Brenner

Die festgestellte Erhöhung der Brenngeschwindigkeit und somit der Flammenstabilität in einem Porenbrenner lässt sich anhand der in Kapitel 2.2.1 eingeführten theoretischen Grundlagen verdeutlichen. Die laminare

Brenngeschwindigkeit ist von der Temperaturleitzahl abhängig, wie in Gl. 2.62 zu sehen ist. Durch das Einsetzen des porösen Festkörpers in die Reaktionszone wird die effektive Temperaturleitzahl des Verbrennungssystems stark durch die guten Wärmetransporteigenschaften des Feststoffs erhöht, was wiederum in einer Zunahme der Brenngeschwindigkeit resultiert. Aus dieser vereinfachten Betrachtung kann abgeleitet werden, dass sich ein Porenbrenner durch die Beeinflussung der effektiven Temperaturleitzahl bezüglich der Flammenstabilität optimieren lässt. Die effektive Temperaturleitzahl des Systems kann durch Variation der Wärmeleitfähigkeit und der Strahlungseigenschaften des verwendeten Schwammes auf der einen Seite und durch die Variation der Strömungsdispersion und somit der Diffusivität der Gasphase auf der anderen Seite beeinflusst werden. Die genannten Wärmetransporteigenschaften der festen Phase sind stark von der Schwammmorphologie und dem Werkstoff abhängig, wobei sich die Strömungsdispersion durch die Strukturgeometrie (Tortuosität) beeinflussen lässt. Die komplexen Zusammenhänge zwischen den Transportparametern und den Schwammmerkmalen sind ausführlich im Kapitel 2.1 behandelt.

Mit dem Ziel, den Porenbrenner zu optimieren und auch die relative Wichtigkeit der unterschiedlichen Wärmetransportmechanismen für die Flammenstabilisierung zu erforschen, wurden im Rahmen dieser Arbeit unterschiedliche Schwammstrukturen untersucht (Tabelle 3.3). Die aus diesen Stabilitätsuntersuchungen gewonnenen Stabilitätsdiagramme werden im folgenden Kapitel dargestellt und diskutiert. Da die Änderung der Schwammparameter – PPI-Zahl, Porosität, Werkstoff – mehrere entgegengesetzte Auswirkungen auf die Flammenstabilität hat, wurde ein Schema der Kopplung der für die Wärmereizirkulation und somit für die Flammenstabilität relevanten Wärmetransportmechanismen vorgeschlagen (Abb 4.8), um ein besseres Verständnis der in den Stabilitätsuntersuchungen detektierten Phänomene (Abb. 4.9-4.15) zu erreichen. Daher wird zunächst der Mechanismus der Wärmereizirkulation in einem mit einer Schwammstruktur bestückten Porenbrenner allgemein vorgestellt, vor der Interpretation der Ergebnisse der Stabilitätsuntersuchungen.

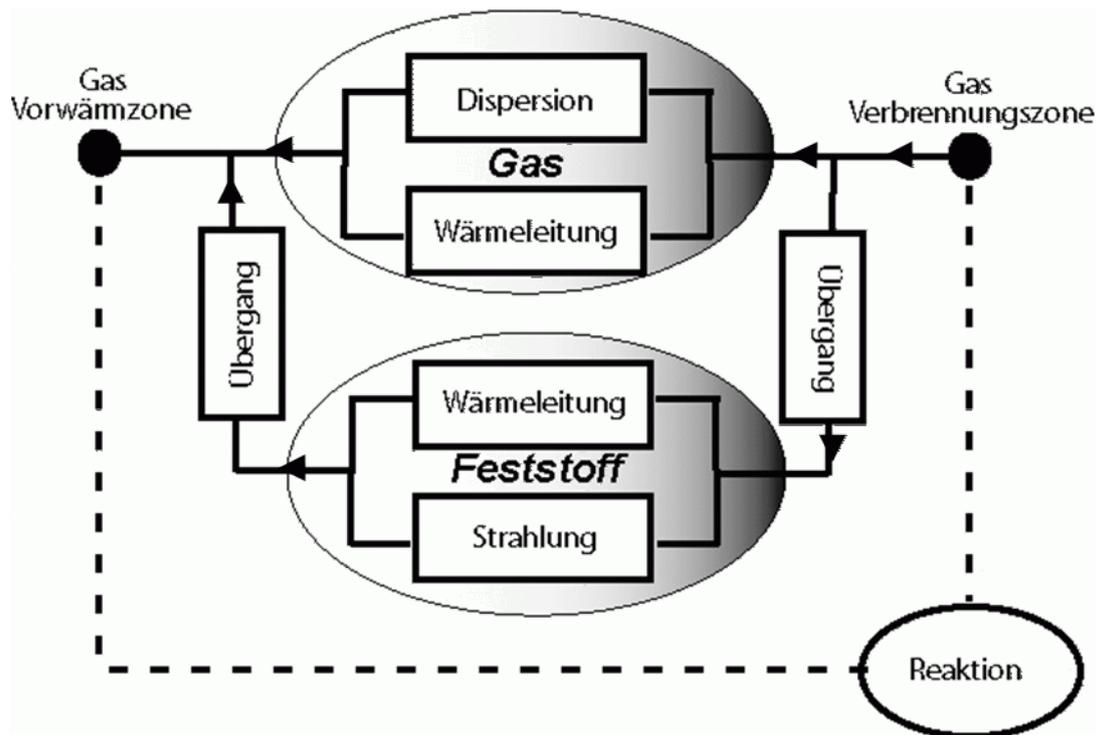


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der Kopplung der für die Wärmezirkulation dominierenden Wärmetransportmechanismen in einem mit einer Schwammstruktur bestückten Porenbrenner

Das vorgeschlagene Schema (Abb. 4.8) ist dargestellt als Schaltung von Widerständen unter der Berücksichtigung, dass die beiden Phasen, Gasphase und feste Phase, in einer Schwammstruktur kontinuierlich sind. Zwischen der heißen Verbrennungszone und der Vorwärmzone des Gases wird die Wärme entlang zweier alternativer Wege transportiert:

- direkt durch das Fluid mittels Gaswärmeleitung und -strahlung
- durch den Wärmeübergang vom Gas an den Feststoff, dann durch die Feststoffphase mittels Wärmeleitung und Strahlung in Richtung Vorwärmzone und schließlich durch den Wärmeübergang vom Feststoff an das Gas.

Die Gasstrahlung ist im Vergleich zur Feststoffstrahlung sehr gering und wurde deshalb in dieser Betrachtung nicht berücksichtigt. Der im Allgemeinen in der Gasphase im Vergleich zur festen Phase vernachlässigbare Wärmeleitungsterm wird nur deshalb in Betracht gezogen, weil er sehr stark durch die Strömungsdiskussion im Schwamm intensiviert wird. Die Wärmetransportmechanismen durch zwei Medien (Gas und Schwamm), die zur Wärmezirkulation von heißer Reaktionszone zur

Vorwärmzone beitragen, sind parallel geschaltet. Die erforderliche Wechselwirkung zwischen zwei Phasen ist anhand des konvektiven Wärmeübergangs berücksichtigt. Dementsprechend sind die Wärmeübergangsterme und die Wärmerückführung durch die feste Phase hintereinander geschaltet. Wie schon besprochen, sind alle hier betrachteten Wärmetransportmechanismen von der Strukturgeometrie, einige auch von Werkstoffparametern, abhängig. Die komplexe Wechselwirkung aller Einflussparameter hat eine unterschiedliche Auswirkung auf jeden Wärmetransportmechanismus. Zur Bestimmung der gesamten Auswirkung einer Parameteränderung auf die Wärmerezirkulation und somit auf die Flammenstabilität können Grundregeln anhand des in Abb. 4.8 dargestellten Kopplungsschemas postuliert werden. Die Größenordnung der gesamten internen Wärmerezirkulation wird bestimmt durch:

- den größten der parallel geschalteten Terme und
- den kleinsten der hintereinander geschalteten Terme.

Dies gilt nur, wenn sich die betrachteten Wärmetransportterme größenordnungsmäßig unterscheiden. Sollen die betrachteten Terme von gleicher Größenordnung sein, wird diese Überlegung noch komplexer, da alle diese Terme von gleicher Bedeutung sind.

Anhand des vorgeschlagenen Kopplungsschemas der wichtigen Wärmetransportmechanismen ist es möglich, das experimentell ermittelte Stabilitätsverhalten diverser Porenbrennerkonfigurationen zu erklären. Allerdings ist es nötig, die Überlegungen über die Auswirkung der jeweiligen Schwammparameteränderung auf den einzelnen betrachteten Wärmetransportmechanismus zu machen, um den Wärmetransportmechanismus mit dem höchsten bzw. kleinsten Wärmetransportwiderstand festzustellen. Um die hierbei aufgestellten Hypothesen für den jeweiligen Porenbrennertyp zu bestätigen, wird zusätzlich eine analytische Abschätzung der Größenordnungen der betrachteten Wärmetransportmechanismen durchgeführt.

Im Folgenden wird zunächst die Vorgehensweise zur analytischen Abschätzung der Größenordnungen unterschiedlicher Wärmetransportvorgänge vorgestellt. Die für die jeweilige Brennerkonfiguration verwendeten Parameter werden dann bei der Diskussion des jeweiligen Stabilitätsdiagramms angegeben. Da die exakten charakteristischen Parameter der untersuchten Strukturen nicht bekannt sind und die verwendeten Modelle zur Beschreibung des Wärmetransports stark vereinfacht wurden, wurde die vorliegende Abschätzung nur mit dem Ziel durchgeführt, die Größenordnungen der Transportmechanismen zu ermitteln. Es wurde kein Versuch unternommen, die Wärmetransportmechanismen, welche die gleiche Größenordnung aufweisen, zu vergleichen.

Die maßgebliche Minderung der Wärmeleitfähigkeit eines Schwammes, im Vergleich zum festen nichtporösen Körper aus dem gleichen Werkstoff, wird mittels der von Boomsma und Poulikakos [93] vorgeschlagenen Beziehung ermittelt, um den Effekt des längeren tortuosen Weges, den die Wärme in einem Schwamm zurücklegen muss, zu berücksichtigen (siehe Kapitel 2.1.3). In Gleichung 4.1 wird die Wärmeleitfähigkeit für den jeweilig untersuchten Schwamm aus der Wärmeleitfähigkeit des Werkstoffs ermittelt.

$$\frac{\lambda_{PIM}}{\lambda_s} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \frac{4k}{2e^2 + \pi k(1-e)} + \frac{3e-2k}{e^2} + \frac{(\sqrt{2}-2e)^2}{2\pi k^2(1-2e\sqrt{2})} \right\}^{-1},$$

$$k = \sqrt{\frac{\sqrt{2}(2 - \frac{5}{8}e^3\sqrt{2} - 2\varepsilon)}{\pi(3 - 4e\sqrt{2} - e)}}, \quad (4.1)$$

$$e = 0,339$$

Die Abschätzung der längenbezogenen Wärmeleitung im Festkörper ist dann mit folgender Gleichung möglich:

$$\dot{q}_{s,Leit} = \lambda_{PIM} \Delta T \quad , \quad \frac{W}{m} \quad (4.2)$$

Hierbei bezeichnet ΔT die Temperaturdifferenz zwischen Reaktions- und Vorwärmzone (siehe Abb. 4.8). Analog dazu lässt sich die Wärmeleitung im Fluid mit folgender Korrelation bestimmen:

$$\dot{q}_{g,Leit} = \lambda_g \Delta T \quad , \quad \frac{W}{m} \quad (4.3)$$

Der Strahlungsbeitrag zur gesamten Wärmereizirkulation wurde anhand der Strahlungsapproximation von Rosseland für optisch dichte Medien (siehe Kapitel 2.1.3) abgeschätzt. Die Strahlungsdichte an einer Stelle x eines eindimensionalen Systems kann somit durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$\dot{q}_r = \frac{4 \sigma}{3 \beta} \frac{\partial T^4}{\partial x} \quad (4.4)$$

Das für den hier gewünschten Zweck der groben Abschätzung von Größenordnungen benötigte eindimensionale Temperaturprofil wurde durch eine lineare Annahme mit folgenden Randbedingungen über eine Flammendicke von ca. 0,035 m (siehe Abb. 4.5) beschrieben:

$$\begin{aligned} x = 0 \quad , \quad T = 300K \\ x = 0,035m \quad , \quad T = 1700K \end{aligned} \quad (4.5)$$

Der gesamte Wärmefluss durch die Strahlung über die Flammendicke $\delta=0,035$ ist daher:

$$\int_0^{\delta} \dot{q}_r \, dx = \frac{4\sigma_B}{3\beta} \int_0^{\delta} \frac{\partial T^4}{\partial x} \, dx = \frac{16\sigma_B}{3\beta} \frac{dT}{dx} \int_0^{\delta} T^3(x) \, dx \quad , \quad \frac{W}{m} \quad (4.6)$$

Der konvektive Wärmeübergang wurde mit den von Younis und Viskanta [112] experimentell ermittelten Beziehungen zur Bestimmung der volumetrischen Nusselt-Zahl (Gl. 2.41) modelliert. Die verwendeten Nu-Re-Korrelationen sind für die Schwämme unterschiedlicher Porendichte in Abb. 2.22 aufgezeigt. Als charakteristische Länge zur Berechnung der Re- bzw. Nu-Zahl wurde der tatsächliche Porendurchmesser (Tabelle 3.1) verwendet, wie es in [112] empfohlen wurde. Der konvektive Wärmeaustausch zwischen zwei Phasen über die Schwammlänge ist somit:

$$\dot{q}_{\text{über}} = \alpha (\Delta T)_{G-S} S_V A_{\text{Schwamm}} \quad , \quad \frac{W}{m} \quad (4.7)$$

Da der Wärmeübergangskoeffizient durch die Nu-Re-Korrelation als eine Funktion der Strömungsgeschwindigkeit und der Schwammgeometrie bestimmt wird, ist die Berechnung des Wärmeübergangsterms auf den Betrag der Temperaturdifferenz $(\Delta T)_{G-S}$ stark empfindlich. Daher liegt die größte Unsicherheit bei der Abschätzung des Wärmeübergangs in der Bestimmung der zwischen Gas und Feststoff vorliegenden Temperaturdifferenz. Durch die Analyse der in Kapitel 4.2 vorgestellten Ergebnisse der numerischen Simulationen der Verbrennung in festen Schwämmen zeigte sich, dass die maximale Temperaturdifferenz $(\Delta T)_{G-S}$ für unterschiedliche Prozessbedingungen (λ , T_{vw}) und für diverse Schwammstrukturen variiert. Für die vorliegende Betrachtung wurde anhand der numerisch ermittelten Temperaturprofile eine Temperaturdifferenz von $(\Delta T)_{G-S} = 40K$ für Al_2O_3 -Schwämme bzw. $(\Delta T)_{G-S} = 10K$ für SiSiC-Schwämme angenommen.

Strömungsdynamisch bedingt, ergibt sich aufgrund der Dispersion in einer Strömung durch eine Schwammstruktur ein erhöhter Massentransport (Kapitel 2.1.2.4). Dies bewirkt eine starke Erhöhung der thermischen Diffusivität des Fluids. Die aus der Strömungsdispersion resultierende Temperaturleitzahl lässt sich wie folgt ausrechnen [72, 105, 106]:

$$\frac{a_g^*}{a_g} = 0,5 Pe \quad (4.8)$$

Damit es möglich ist, diese für Kugelschüttungen ermittelte Korrelation (Gl. 4.8) auf keramische Schwämme anzuwenden, ist es nötig, ein charakteristisches Längenmaß der Dispersion zu bestimmen. In Kapitel 4.2.1.2 wurde das zur Bestimmung der Dispersionskoeffizienten in festen Schwämmen verwendete numerische Verfahren beschrieben.

Die aufgrund der Strömungsdispersion sich ergebende volumenbezogene Wärmeleitung ist gegeben durch:

$$\dot{q}_{Disp} = a_g^* \rho_g c_{p,g} \Delta T \quad , \quad \frac{W}{m} \quad (4.9)$$

Das in diesem Abschnitt vorgestellte Kopplungsschema (Abb. 4.8) der wichtigen Wärmetransportmechanismen stellt, zusammen mit den abgeschätzten Beträgen dieser Transporttermen, eine Basis für die in folgenden Kapiteln ausgeführte Interpretation der experimentell ermittelten Stabilitätsdaten dar.

4.1.3.1 Al₂O₃-Brenner

Der Einfluss der Porendichte eines aus Aluminiumoxid hergestellten Schwammes auf die Flammenstabilität wurde untersucht, indem zwei unterschiedliche Schwammtypen gleicher nomineller Porosität von 85% und mit 10 PPI bzw. 20 PPI (K01 und K02 in Tabelle 3.3) in der Reaktionszone eingesetzt wurden. Die ermittelten Stabilitätsdiagramme für die Luftvorwärmtemperatur von 25°C bzw. 350°C sind in Abb. 4.9 bzw. 4.10 dargestellt. Eine mit der Erhöhung der Porendichte verknüpfte Reduktion der Flammenstabilität in einem Aluminiumoxid-Porenbrenner ist für beide der untersuchten Einlasstemperaturen der Verbrennungsluft zu beobachten. Durch die Veränderung der Porendichte werden die für die Flammenstabilisierung relevanten Wärmetransportmechanismen wie Wärmeleitung durch die feste Phase, Feststoff-zu-Feststoff-Strahlung und

Strömungsdispersion beeinflusst. Eine Minderung des Porendurchmessers, welche sich aus der Erhöhung der PPI-Zahl ergibt, hat eine Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit des Schwammes zur Folge (siehe Kapitel 2.1.3, z.B. Gl. 2.32) und trägt somit positiv zur Flammenstabilisierung bei. Darüber hinaus wird der für die Abschwächung der Strahlungsintensität entlang eines Mediums relevante Extinktionskoeffizient höher mit steigender Porendichte (Gl. 2.38 und Gl. 2.39), was eine negative Auswirkung auf die Flammenstabilität hat. Weiter ergibt die Reduktion des Porendurchmessers bei gleicher Gasgeschwindigkeit eine Schwächung der Strömungsdispersion, wie in Abschnitt 2.1.2.4 erläutert wurde, und verringert somit die zur Flammenstabilisierung beitragende thermische Diffusivität in der Gasphase.

Das in den Experimenten ermittelte Verhalten eines Porenbrenners, dessen Reaktionszone aus einem Al_2O_3 -Schwamm besteht, lässt sich anhand des vorgeschlagenen Konzeptes (Abb. 4.8) erklären. Beim Einsatz von Materialien wie z.B. Al_2O_3 , welche eine relativ geringe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität aufweisen, ist es zu erwarten, dass die Wärmerückführung mittels Wärmeleitung im Feststoff sowie Feststoffstrahlung einen bestimmenden Schritt für die Wärmezirkulation durch die Feststoffphase darstellt. Der Wärmetransportwiderstand für den konvektiven Gas-Feststoff-Wärmeübergang ist aufgrund der hohen spezifischen Oberfläche der Schwammstrukturen in diesem Fall relativ gering. Aus diesem Grund sollten der mit der Erhöhung der PPI-Zahl verbundene Zuwachs der spezifischen Oberfläche und die entsprechende Intensivierung des Wärmeüberganges keine weitere Verbesserung der Flammenstabilität liefern. Die Wärmeleitung, welche im hier betrachteten Fall die Wärmerückleitung in der Feststoffphase bestimmt, erhöht sich mit steigender Porendichte. Unter Berücksichtigung der besonders bei hohen Temperaturen geringen Wärmeleitfähigkeit von Aluminiumoxid selbst sollte die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit durch die Variation von 10 PPI auf 20 PPI keinen signifikanten Beitrag zur Wärmerückführung haben. Dies folgt aus der in Kapitel 4.3.1 eingeführten Regel, dass bei den parallelgeschalteten Termen der größte bestimmend ist. Daher ist die Wärmerückführung durch den Feststoff hauptsächlich durch die Strahlung bestimmt. Eine Änderung des Betrags des Wärmetransports mittels Strahlung hat deshalb eine entscheidende Auswirkung auf die Flammenstabilität. Demzufolge weist der K02-Brenner aufgrund seines höheren Extinktionskoeffizienten einen schlechteren Stabilisierungseffekt auf als der K01-Brenner. Dieser Befund stimmt mit den im Kapitel 2.2.3 ausführlich dargestellten Ergebnissen von [141] für den PSZ-Schwamm, der auch eine geringe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität aufweist, überein. Darüber hinaus hat die geringere Strömungsdispersion des 20 PPI Schwammes (bei gleicher Gasgeschwindigkeit) einen negativen Einfluss auf die Flammenstabilität. Um diese Überlegungen zu bestätigen wird nun eine Abschätzung der Größenordnung

wichtiger Wärmetransportmechanismen anhand von dem im vorherigen Kapitel vorgestellten Verfahren (Gl. 4.1-4.9) durchgeführt.

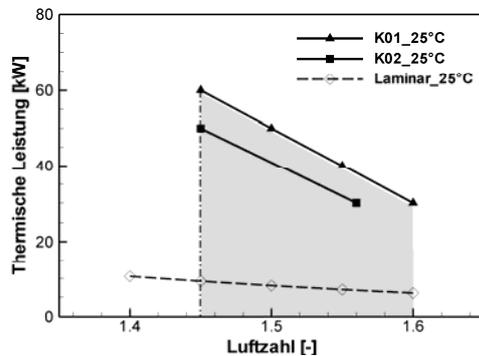


Abbildung 4.9: Stabilitätsdiagramm der Al_2O_3 -Brenner (TVW= 25°C)

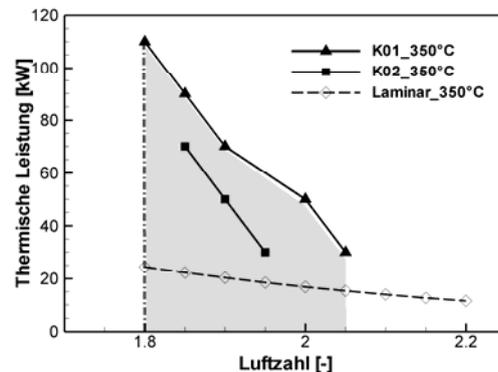


Abbildung 4.10: Stabilitätsdiagramm der Al_2O_3 -Brenner (TVW= 350°C)

Die physikalischen Parameter, welche für die hier durchgeführte Größenordnungsabschätzung verschiedener relevanter Wärmetransportmechanismen benötigt werden, sind in Tabelle 4.1 angegeben. Einige Wärmetransportmechanismen sind von der Anströmgeschwindigkeit abhängig (Gl. 2.41 und Gl. 4.8); der untersuchte Geschwindigkeitsbereich ist in Tabelle 4.1 angegeben. Die mit den verwendeten empirischen Korrelationen, vereinfachten Modellen und getroffenen Annahmen (Strahlungsaustauschoberfläche, Flammendicke, lineares Temperaturprofil, Temperaturdifferenz zwischen zwei Phasen) durchgeführte Abschätzung kann nur die Größenordnungen der untersuchten Wärmetransporttermen liefern. Es soll daher kein Vergleich zwischen den Werten gleicher Größenordnung gemacht werden. Eine zusätzliche Unsicherheit stammt aus den für die vorhandenen Schwammproben unbekanntem Parametern, wie z.B. den Extinktionskoeffizienten (Tabelle 4.1), welche aus den Literaturdaten [90] übernommen wurden. Die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit durch eine steigende Porendichte ist nicht mit dem hier verwendeten Modell von Boomsma und Poulidakos (Gl. 4.1) erfasst und wird deshalb durch eine geringe Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit des Werkstoffs λ_s in der Abschätzung berücksichtigt. Der Betrag von λ_s wurde aus der relativen Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit, bedingt durch die Zunahme der PPI-Zahl, anhand der Gl. 2.32 für die PSZ abgeschätzt.

Die Ergebnisse der durchgeführten Größenordnungsabschätzung sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Der Wärmeübergang ist aufgrund der hohen spezifischen Oberfläche groß im Vergleich zu den anderen Wärmeströmen, die zur Wärmerückführung beitragen. Dementsprechend kann der Wärmerücktransport in einem Aluminiumoxidschwamm als entscheidend für die Flammenstabilität betrachtet werden. Eine durch Erhöhung der Porendichte verursachte Hemmung des

Wärmerücktransports, bedingt durch eine Steigerung des Extinktionskoeffizienten unter gleichzeitiger Minderung der Strömungsdispersion, führt zu einem geringeren Stabilisierungseffekt des K02-Brenners im untersuchten Betriebsbereich, relativ zum K01-Brenner (Abb. 4.9, 4.10).

Tabelle 4.1: Parameter für die Größenordnungsabschätzung relevanter Wärmetransportmechanismen in Al_2O_3 -Brennern

PPI	u_{Leerrohr} [m s ⁻¹]	ε [%]	S_V [m ⁻¹]	d_{pe} [mm]	d_{re} [mm]	λ_s [W/m ² K]	β [m ⁻¹]	C_{Nu} [-]	m_{Nu} [-]
10	0,6 – 7,5	85	629	2,0	1,95	5	210	0,146	0,96
20	0,6 – 7,5	85	1109	1,8	1,14	6	300	0,139	0,92

Tabelle 4.2: Abgeschätzte Größenordnungen relevanter Wärmetransportmechanismen in Al_2O_3 -Brennern [W m⁻¹]

PPI	Wärmeleitung Feststoff (Gl. 4.2)	Strahlung (Gl. 4.6)	Dispersion Gl. 4.9	Wärmeübergang Gl. 4.7
10	10^2	10^3	$10^2 - 10^3$	$10^4 - 10^5$
20	10^2	10^3	$10^2 - 10^3$	$10^4 - 10^5$

Weiterhin kann der Einfluss der Einlasstemperatur der Verbrennungsluft auf die Flammenstabilität in Abb. 4.9 und 4.10 beobachtet werden. Aus der in Kapitel 2.2.1 eingeführten vereinfachten Betrachtung des Einflussparameters der laminaren Brenngeschwindigkeit (Gl. 2.67) zeigt sich, dass die Frischgastemperatur eine starke Auswirkung auf die laminare Brenngeschwindigkeit hat. Die starke Erhöhung der laminaren Brenngeschwindigkeit mit steigender Luftvorwärmtemperatur für eine bestimmte Luftzahl resultiert in einer Verschiebung der Flammenstabilitätsgrenze zu höheren Luftzahlen für eine konstante thermische Leistung. Der untersuchte Luftzahlbereich ist zusätzlich durch die maximale Betriebstemperatur des jeweiligen untersuchten Schwammes begrenzt. Da eine höhere Temperatur des Frischgases eine höhere Verbrennungstemperatur zur Folge hat, wurden für die Experimente mit einer Vorwärmung der Luft höhere Luftzahlen eingesetzt, um die Prozesstemperatur unterhalb der Grenztemperatur (1600°C für Al_2O_3 -Schwämme) zu halten. Dementsprechend war das Temperaturfenster in allen Versuchen, unabhängig von der eingestellten Luftvorwärmtemperatur, nahezu identisch. Der bei zwei untersuchten Luftvorwärmtemperaturen detektierte Unterschied in Steigung der Stabilitätskurven resultiert aus dem unterschiedlichen Betrag der Dispersion (aufgrund der

unterschiedlichen Gaseschwindigkeiten). Das gleiche Verhalten wurde auch in [182] beobachtet, wobei hier die Dispersion als „Turbulenz“ bezeichnet wurde.

Einfluss der Schwammporosität auf die Flammenstabilität

Zur Untersuchung der Auswirkung einer Porositätsänderung des in der Verbrennungszone eingesetzten Porenkörpers auf die Flammenstabilität wurden zwei Brennerkonfigurationen mit den Aluminiumoxid-Schwämmen gleicher Porendichte (10 PPI) und unterschiedlicher Porosität (K01 und K03 in Tabelle 3.3) erforscht. Die Stabilitätsuntersuchungen wurden für zwei Luftvorwärmtemperaturen von 25°C bzw. 350°C durchgeführt; die ermittelten Stabilitätsdiagramme sind in Abb. 4.11 bzw. 4.12 dargestellt. Für den untersuchten Bereich thermodynamischer Bedingungen ist kein deutlicher Unterschied zwischen den Stabilisierungseffekten der zwei Brennerkonfigurationen (K01 und K03) zu erkennen. Vorteilhaft für die Studie dieses Effekts wäre eine höhere Änderung der Porosität im Vergleich zur geringen Porositätsdifferenz K01 (85%) und K03 (80%). Allerdings ergab eine nähere Qualitätsüberprüfung, dass die Schwämme geringerer Porosität (75%) einen hohen Anteil der Strukturinhomogenitäten aufweisen, vermutlich aufgrund der Beschränkung des Herstellungsprozesses bezüglich der Schwammgröße. Aus diesem Grund wurde der Al_2O_3 -Schwamm mit 10 PPI und einer Porosität von 75% in den vorliegenden Untersuchungen nicht berücksichtigt. Die Entstehung der in einigen Typen von Aluminiumoxid-Schwämmen detektierten Strukturinhomogenitäten wurde im Kapitel 3.1 näher diskutiert.

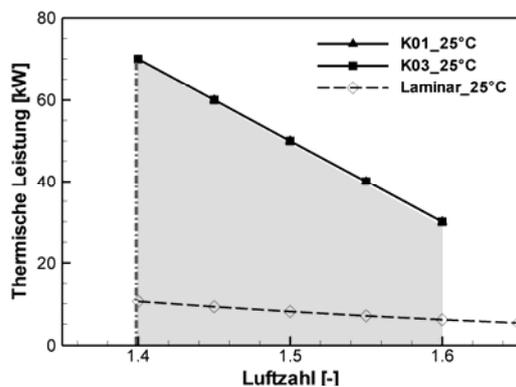


Abbildung 4.11: Stabilitätsdiagramm der Al_2O_3 -Brenner (TVW= 25°C)

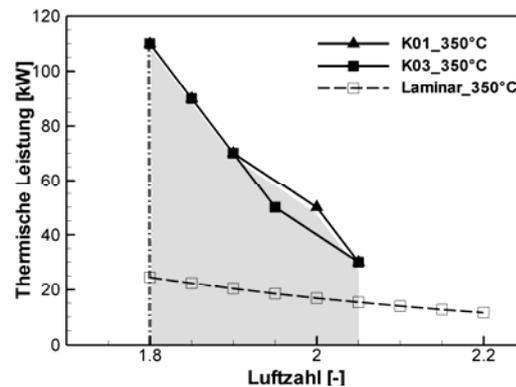


Abbildung 4.12: Stabilitätsdiagramm der Al_2O_3 -Brenner (TVW= 350°C)

Die Quantifizierung der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner mit der interstitiellen Geschwindigkeit (siehe Abschnitt 4.1.3.3) liefert eine höhere Brenngeschwindigkeit im Schwamm geringerer Porosität. Dementsprechend weist

ein 10 PPI Aluminium-oxid-Schwamm der Porosität 80% anscheinend einen besseren Stabilisierungseffekt auf als der entsprechende Schwamm mit einer Porosität von 85%. Allerdings ist vom technisch relevanten Standpunkt aus die erreichbare thermische Leistungsdichte entscheidend, und diese war für beide untersuchten Brennerkonfigurationen (K01 und K03) gleich.

Mechanische Stabilität der Al_2O_3 -Schwämme

Eine Beschädigung der Aluminiumoxid-Schwämme durch Rissbildung trat als Folge der auftretenden äußerst hohen Temperaturgradienten über das Schwammvolumen während der Zünd- und Erlöschungs-Prozesse auf. Dieser Effekt wurde mit jedem erneuten Aufwärm- bzw. Abkühlvorgang der Anlage ausgeprägter. Bedingt durch die gebildeten Risse kam es gelegentlich bei hohen Durchsätzen zum Abtragen des porösen Materials. Eine Möglichkeit, dieses Problem zu bewältigen, liegt im Segmentieren der sonst großen Schwammproben ($D=160$ mm). Diese Methode zur Minderung der thermischen Spannungen und somit der Rissbildung wurde in der vorliegenden Arbeit nicht verwendet, da das Segmentieren von Schwammproben den ohnehin schon hohen Aufbauaufwand stark vergrößern würde.

4.1.3.2 SiSiC-Brenner

Um den Einfluss der thermischen Werkstoffeigenschaften auf die Flammenstabilität zu untersuchen, wurden neben den Al_2O_3 -Schwämmen auch SiSiC-Monolithen untersucht. Im Gegensatz zu den aus dem Aluminiumoxid hergestellten Schwammstrukturen weisen die SiSiC-Schwämme sehr hohe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität auf. Um die Kenntnisse über den Flammenstabilisierungsmechanismus in SiSiC-Schwämmen zu gewinnen, erfassten die durchgeführten Stabilitätsuntersuchungen die Schwämme unterschiedlicher Porendichte und gleicher Porosität (K04, K05 in Tabelle 3.3). Die ermittelten Stabilitätsdiagramme für drei unterschiedliche Luftvorwärmtemperaturen von $25^\circ C$, $85^\circ C$ und $350^\circ C$ sind in Abb. 4.13, 4.14 bzw. 4.15 dargestellt. Aufgrund der deutlich geringeren maximalen Betriebstemperatur von SiSiC-Schwämmen ($1400^\circ C$) im Vergleich zu den Al_2O_3 -Schwämmen ($1600^\circ C$) unterschieden sich die Bereiche der untersuchten Betriebspunkte in diesen zwei Brennertypen. Erhöhung der thermischen Leistung erfordert eine entsprechende Minderung der Luftzahl und daher Erhöhung der Verbrennungstemperatur. Dementsprechend umfasst der untersuchte Leistungsbereich bei SiSiC-Schwämmen geringere maximale Werte, da die geringeren Temperaturen, d.h. höheren Luftzahlen als im Fall von Al_2O_3 -Brennern eingestellt werden mussten. Die minimale eingestellte thermische Leistung ergab sich durch den Messbereich der eingebauten Durchflussmesser.

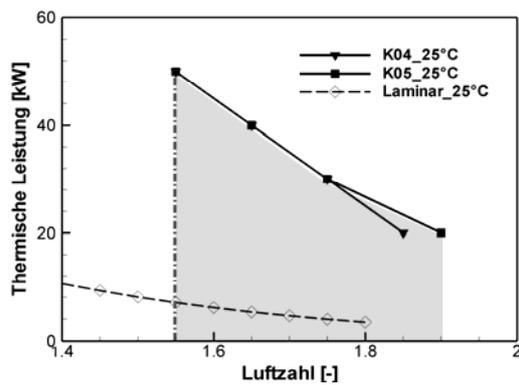


Abbildung 4.13: Stabilitätsdiagramm der SiSiC-Brenner (TVW= 25°C)

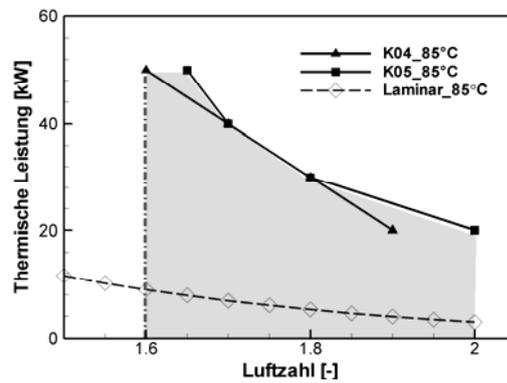


Abbildung 4.14: Stabilitätsdiagramm der SiSiC-Brenner (TVW= 85°C)

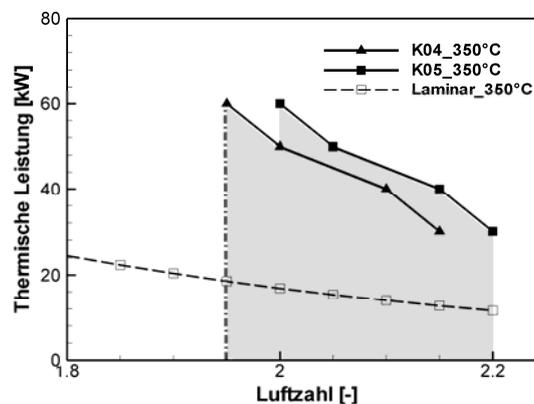


Abbildung 4.15: Stabilitätsdiagramm der SiSiC-Brenner (TVW= 350°C)

Das in Abb. 4.13 – 4.15 zusammengefasste Stabilitätsverhalten von SiSiC-Schwämmen mit 10 PPI bzw. 20 PPI unterscheidet sich ausschlaggebend von der detektierten Verhaltensweise in den untersuchten Aluminiumoxid-Brennern (Abb. 4.9 und 4.10). Für die niederen Luftvorwärmtemperaturen (Abb. 4.13 und 4.14) ist kein deutlicher Unterschied im Stabilisierungseffekt der SiSiC-Schwämme unterschiedlicher Porendichte zu beobachten. In diesen Fällen beinhaltet der stabile Betriebsbereich niedrige Luftzahlen, relativ zu dem im Falle mit Erwärmung der Verbrennungsluft bis zu 350°C und demzufolge relativ geringe Gasgeschwindigkeiten bei der gleichen thermischen Leistung.

Wieder kann das festgestellte Stabilitätsverhalten durch den eingeführten vereinfachten Mechanismus der Wärmezirkulation in einem Porenbrenner (Abb. 4.8) erklärt werden. Bedingt durch die hohe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität der

SiSiC-Schwämme ist es nicht mehr zu erwarten, dass der Wärmetransport durch die Wärmeleitung und Strahlung in der festen Phase unbedingt den bestimmenden Schritt für die Wärmerückführung darstellt, wie im Fall des Al_2O_3 -Brenners. Bedingt durch die hohe Wärmeleitfähigkeit gewinnt der Wärmetransport durch die Wärmeleitung in SiSiC-Schwämmen an Bedeutung relativ zur Strahlung. Wieder wurde die zuvor beschriebene Größenordnungsabschätzung der für die Wärmerückführung relevanten Wärmetransportmechanismen (Gl. 4.1 – 4.9) durchgeführt. Die für diese Berechnung verwendeten Schwammparameter sind in Tabelle 4.3 aufgelistet; die ermittelten Größenordnungen verschiedener Wärmetransportmechanismen sind in Tabelle 4.4 gegeben. Die in Tabelle 4.4 aufgeführten Ergebnisse deuten darauf hin, dass die Feststoffwärmeleitung in SiSiC-Schwämmen um eine Größenordnung höher ist als die der Aluminiumoxid-Schwämme und von gleicher Größenordnung wie der Strahlungsterm. Demzufolge ergibt sich die Möglichkeit, dass die Summe der zur Wärmerückführung in der festen Phase beitragenden Wärmetransportmechanismen den Betrag des Wärmeüberganges für gewisse Gaseschwindigkeiten überschreitet. Also, abhängig von der Strömungsgeschwindigkeit, konkurrieren die Wärmerückführung im Festkörper und der konvektive Wärmeübergang in einem SiSiC-Brenner miteinander.

Tabelle 4.3: Parameter für die Größenordnungsabschätzung relevanter Wärmetransportmechanismen in SiSiC-Brennern

PPI	u_{Leerrohr} [m s ⁻¹]	ε [%]	S_V [m ⁻¹]	d_{pe} [mm]	d_{Re} [mm]	λ_s [W/m ² K]	β [m ⁻¹]	C_{Nu} [-]	m_{Nu} [-]
10	0,6 – 7,5	87	473	3,24	2,18	40	178	0,146	0,96
20	0,6 – 7,5	87	683	3,05	1,603	42,3	244	0,139	0,92

Tabelle 4.4: Abgeschätzte Größenordnungen relevanter Wärmetransportmechanismen in SiSiC-Brennern [W m⁻¹]

PPI	Wärmeleitung Feststoff (Gl. 4.2)	Strahlung (Gl. 4.6)	Dispersion Gl. 4.9	Wärmeübergang Gl. 4.7
10	10^3	10^3	$10^2 - 10^3$	$10^3 - 10^4$
20	10^3	10^3	$10^2 - 10^3$	$10^3 - 10^4$

Um dieses Phänomen zu veranschaulichen, sind die aus der Berechnung ermittelten Werte als Vergleich zwischen der Wärmerückführung in der festen Phase, welche Feststoffwärmeleitung und -strahlung zusammenfasst, und dem

Wärmeübergang zwischen zwei Phasen, in Abhängigkeit von der Leerrohrgeschwindigkeit, in Abb. 4.16 dargestellt. Hierbei muss noch einmal betont werden, dass die ermittelten Werte aus einer mit groben Approximationen durchgeführten Berechnung resultieren, sie sollen nicht quantitativ sondern nur qualitativ betrachtet werden. Abb. 4.16 zeigt, dass für die geringen Gasgeschwindigkeiten der Widerstand des konvektiven Wärmeübergangs höher als der des Wärmetransports durch den Feststoff ist. Also ist für den bestimmten Bereich der Strömungsgeschwindigkeit die in festen Phase zurückgeführte Wärmemenge durch den Betrag des Wärmeübergangs zwischen zwei Phasen begrenzt. Dies bedeutet, dass ein Bereich der Betriebsbedingungen besteht, in welchem der konvektive Wärmeübergang den bestimmenden Schritt für die Flammenstabilisierung darstellt. Der Geschwindigkeitsbetrag im Schnittpunkt der Wärmeübergangs- und der Wärmerückführungskurve soll hier aufgrund der groben Abschätzung nicht als absolut betrachtet werden. Darüber hinaus kann man trotz der groben Abschätzung behaupten, dass die Wärmeübergangskurve für den 20 PPI Schwamm (K05) aufgrund seiner höheren spezifischen Oberfläche steiler als die entsprechende Kurve für den 10 PPI Schwamm (K04) ist (siehe Gl. 4.7).

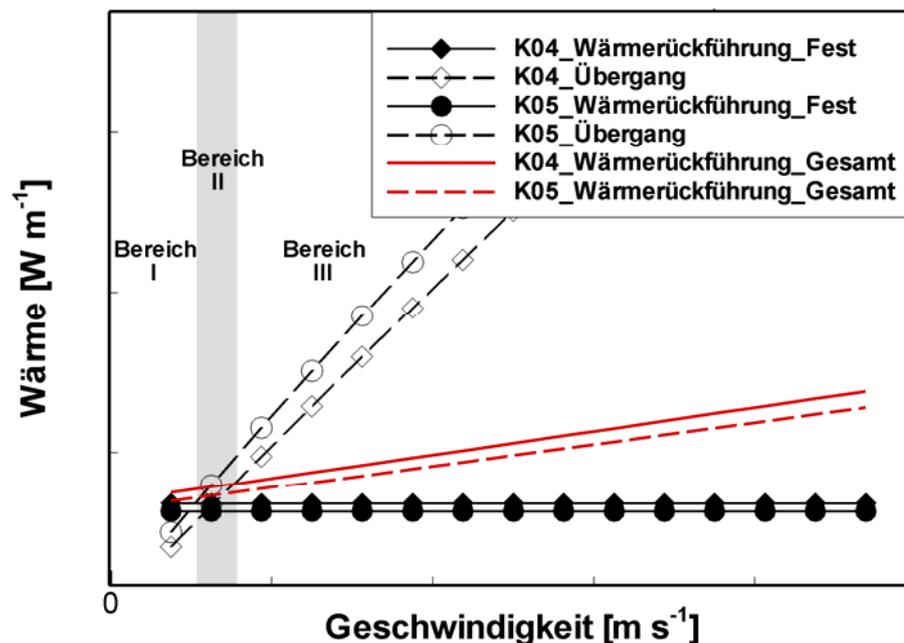


Abbildung 4.16: Qualitative Darstellung der abgeschätzten Beiträge relevanter Wärmetransportmechanismen in SiSiC-Brennern

Unter Berücksichtigung der eingeführten Betrachtungen und des Schemas des Wärmerezirkulationsmechanismus (Abb. 4.8) lässt sich nun das in Experimenten nachgewiesene Flammenstabilitätsverhalten der SiSiC-Brenner erklären. Die mit einer Variation der PPI-Zahl von 10 auf 20 PPI verknüpfte Änderung der Porengröße führt zur Erhöhung der Schwammwärmeleitfähigkeit, welche die Flammenstabilisierung positiv beeinflusst, mit gleichzeitiger Steigerung des Extinktionskoeffizienten, welche eine negative Auswirkung auf die Flammenstabilität hat. Da diese beide parallelgeschalteten Wärmetransportterme, Wärmeleitung und Strahlung des Feststoffs, von der gleichen Größenordnung sind, beeinflussen sie die Wärmerezirkulation und somit die Flammenstabilisierung gleichwertig. Jedoch lässt sich anhand der hier durchgeführten Abschätzung der Größenordnungen keine Aussage bezüglich der Höhe des Gesamtbetrags der Wärmerückführung im Feststoff für die zwei untersuchten SiSiC-Strukturen treffen. Die Wärme wird aufgrund der hervorragenden Wärmetransporteigenschaften der SiSiC-Schwämme in beiden Brennerkonfigurationen (K04 und K05) effektiv in Richtung Vorwärmzone transportiert. Wie zuvor diskutiert, wurden im Falle von geringen Luftvorwärmtemperaturen (Abb. 4.13 und 4.14) relativ geringe Gasgeschwindigkeiten (Bereich I in Abb. 4.16) angewandt. Dementsprechend wird die Flammenstabilisierung in diesem Geschwindigkeitsbereich durch den konvektiven Wärmeaustausch zwischen zwei Phasen dominiert. Dies folgt aus der in Kapitel 4.3.1 eingeführten Regel, dass der geringste der hintereinander geschalteten Terme (hier Wärmeübergang und Wärmerückführung in fester Phase) bestimmend ist. In diesem Geschwindigkeitsbereich ist der Stabilisierungseffekt in beiden untersuchten SiSiC-Schwammstrukturen nahezu gleich, da sich die hier bestimmenden Wärmeübergangsterme kaum unterscheiden. Jedoch zeigte der K05-Brenner für die geringste untersuchte thermische Leistung (20 kW) d.h. die höchste Grenzluftzahl (Abb. 4.13 und 4.14), einen etwas besseren Stabilisierungseffekt relativ zum K04-Brenner. Dieser Betriebspunkt kann als Schrittpunkt zwischen Wärmerückführungs- und Wärmeübergangskurve oder als Punkt innerhalb des Bereichs II in Abb. 4.16 aufgefasst werden. Unter diesen Bedingungen (Bereich II) wird der konvektive Wärmeaustausch zwischen zwei Phasen im K05-Brenner gleich oder höher als die Wärmerückführung in der festen Phase. Demgegenüber verbleibt der Wärmeübergangsterm im K04-Brenner im Bereich II der bestimmende Schritt für die Flammenstabilisierung, so dass der **eventuell** höhere (relativ zum K05-Brenner) Wärmerückführungsterm immer noch durch den Wärmeaustausch zwischen zwei Phasen begrenzt bleibt.

Erwärmung der Verbrennungsluft auf 350°C (Abb. 4.15) führt zur Verschiebung des stabilen Betriebsbereichs des Porenbrenners zu den höheren Luftzahlen, d.h. höhere Gasgeschwindigkeiten werden eingesetzt. Unter diesen Bedingungen weist der K05-Brenner einen besseren Stabilisierungseffekt im Vergleich zum K04-Brenner für den gesamten untersuchten Leistungsbereich auf. Solches Verhalten

kann im zuvor diskutierten Geschwindigkeitsbereich II in Abb. 4.16 beobachtet werden. In diesem Geschwindigkeitsbereich ist der Stabilisierungseffekt eines 20 PPI SiSiC-Schwammes höher als im Falle des 10 PPI Schwammes unabhängig davon, welcher absolute Betrag der Wärmerückführung größer ist. Darüber hinaus ist die Strömungsgeschwindigkeit im Bereich III ausreichend hoch, so dass der Wärmeübergangsterm in beiden Brennerkonfigurationen höher als die Menge der zurückgeführten Wärme ist. Also wird die Flammenstabilität in diesem Geschwindigkeitsbereich durch die Wärmerückführung dominiert. Wie zuvor angedeutet, ist die hier durchgeführte Abschätzung der Größenordnungen grob und ermöglicht keinen Vergleich zwischen den Termen gleicher Größenordnung (Tabelle 4.4). Alle in diese Betrachtung einbezogenen Transportterme für die Wärmerückführung sind der gleichen Größenordnung, wobei die im Fall der SiSiC-Schwämme maßgebliche Feststoffwärmeleitung mit Erhöhung der Porendichte steigt, sinkt der Wärmetransport mittels der Strahlung und der Strömungsdispersion mit dieser Strukturänderung. Darüber hinaus wurde die Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit mit steigender PPI-Zahl im Modell (Gl. 4.1) nicht berücksichtigt. In der vorliegenden Betrachtung wurde die Steigung der Wärmeleitfähigkeit mit Verringerung der Porengröße nur anhand einer grob abgeschätzten und sehr geringen prozentualen Erhöhung modelliert. Trotzdem sind die Terme der gesamten Wärmerückführung durch die Feststoffwärmeleitung, Feststoff-zu-Feststoffstrahlung und Strömungsdispersion in beiden Schwammstrukturen, 10 und 20 PPI, sehr ähnlich (siehe Abb. 4.16). Demzufolge ist es nicht möglich durch die vorgeführte Analyse eine Aussage zu machen, in welchem Schwamm die gesamte Wärmerückführung höher ist. Dies gilt nur für die SiSiC-Schwämme, wo Wärmeleitung und Strahlung im Feststoff gleichbedeutend sind. Jedoch deuten die experimentellen Ergebnisse (Abb. 4.13-4.15) darauf hin, dass der 20 PPI Schwamm auch im Bereich hoher Strömungsgeschwindigkeiten (Bereich III in Abb. 4.16) eine bessere Wärmerezirkulation bereitstellen kann.

Das Temperaturfenster war für alle Stabilitätsuntersuchungen nahezu identisch, bedingt durch die Beschränkung der maximalen Betriebstemperatur des Schwammes. Infolgedessen können die unterschiedlichen Beiträge der temperaturabhängigen Größen, Wärmeleitfähigkeit und Emissivität, bei verschiedenen Luftvorwärmtemperaturen ausgeschlossen werden. Deshalb kann das detektierte Verhalten der untersuchten Brennerkonfigurationen (K04 und K05) bei verschiedenen Eingangstemperaturen der Verbrennungsluft nur durch die Änderung der Gasgeschwindigkeit und somit des Wärmeübergangsterms und der Strömungsdispersion erklärt werden.

Mechanische Stabilität der SiSiC-Schwämme

Die untersuchten SiSiC-Schwämme bewiesen, im Vergleich zu den Al₂O₃-Schwämmen, eine deutlich bessere mechanische Stabilität bezüglich der Rissbildung aufgrund der hohen Temperaturgradienten über das Schwammvolumen. Die hohe Wärmeleitfähigkeit, gekoppelt mit einem geringen Wärmeausdehnungskoeffizienten und hoher Festigkeit, resultiert in einer hervorragenden Thermoschockbeständigkeit des Siliziumcarbids. Zusätzlich trägt das in Steghohlräume infiltrierte Silizium zur Thermoschockbeständigkeit dieser Schwämme bei. Jedoch ist das infiltrierte Silizium der Grund für die relativ geringe maximale Betriebstemperatur von 1400°C.

4.1.3.3 Optimierung des Porenbrenners

Zu Vergleichszwecken wurden die ermittelten und zuvor diskutierten Stabilitätsdiagramme aller untersuchten Brennerkonfigurationen in Abb. 4.17 und 4.18 für die Luftvorwärmtemperatur von 25°C bzw. 350°C zusammengefasst. Obwohl es, bedingt durch die unterschiedlichen maximal einsetzbaren Temperaturen der Al₂O₃- und SiSiC-Schwämme nicht möglich war, die Stabilitätsuntersuchungen für die gleichen Betriebsbedingungen durchzuführen, kann ein Vergleich unterschiedlicher Brennerkonfigurationen für das Überlappungsfeld der stabilen Betriebsbereiche durchgeführt werden. Abb. 4.17 und 4.18 zeigen, dass die aus SiSiC hergestellten Schwämme eine bessere Flammenstabilität für alle gemeinsamen Betriebspunkte als die Al₂O₃-Schwämme gewährleisten. Dieser Trend ist aufgrund der hervorragenden Wärmetransporteigenschaften der SiSiC-Schwämme erwartet. Dementsprechend sollen für die hier untersuchte Anwendung die SiSiC-Schwämme bevorzugt werden, und zwar nicht nur aufgrund ihres hohen Stabilisierungseffekts, sondern auch aufgrund ihrer hohen mechanischen Stabilität. Jedoch ist die maximale Betriebstemperatur der Al₂O₃-Schwämme (1600°C) deutlich höher als die der SiSiC-Schwämme. Daher können die Aluminiumoxid-Schwämme für bestimmte Anwendungen günstiger sein. Die höhere Betriebstemperatur der Al₂O₃-Schwämme ermöglicht den Betrieb bei höheren Luftzahlen als im Falle von SiSiC-Schwämmen und somit bei höheren spezifischen Leistungen, was sich als vorteilhaft zeigt, wenn die gewünschte Leistung nicht durch das Manipulieren der Brennergeometrie erreicht werden kann.

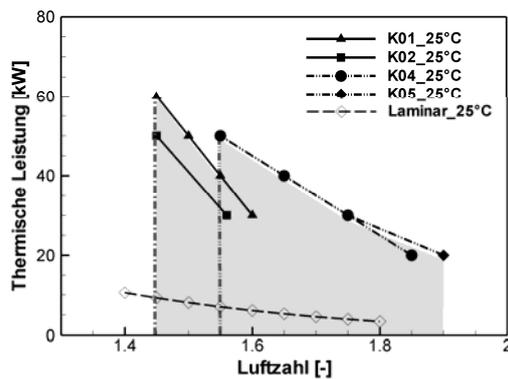


Abbildung 4.17: Stabilitätsdiagramm für die Luftvorwärmtemperatur von 25°C

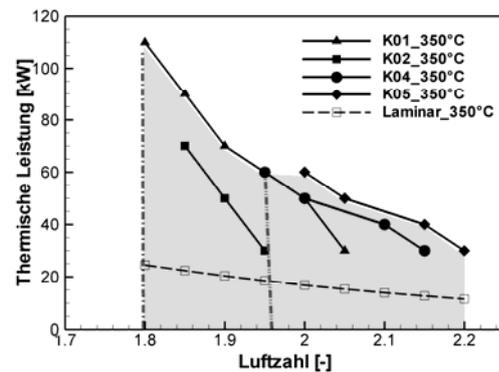


Abbildung 4.18: Stabilitätsdiagramm für die Luftvorwärmtemperatur von 350°C

Die Flammenstabilitätskurven für SiSiC- und Al₂O₃-Schwämme weisen unterschiedliche Tendenzen auf, die sich hauptsächlich in der Steigung zeigen (Abb. 4.17 und 4.18). Neben der Tatsache, dass die unterschiedlichen Luftzahlbereiche für die zwei Schwammkategorien untersucht wurden, kann die Ursache für den Unterschied in der Steigung der Stabilitätskurven durch die unterschiedlichen Temperaturabhängigkeiten der Wärmetransporteigenschaften dieser zwei Materialien erklärt werden. Die Temperaturabhängigkeiten von Wärmeleitfähigkeit und Emissivität der Festkörper aus SiC und Al₂O₃ sind in Abb. 4.19 bzw. 4.20 dargestellt und zeigen, dass die mit der Änderung der Luftzahl verknüpfte Variation der Prozesstemperatur eine unterschiedliche Auswirkung auf den Wärmetransport in SiSiC- und Al₂O₃-Brennern hat. Die höhere Steigung der Stabilitätskurve bei Al₂O₃-Schwämmen kann durch die steile Absenkung des Emissionsgrades des Aluminiumoxids mit Erhöhung der Temperatur (s. Abb. 4.20) begründet werden. Darüber hinaus kann schon rein optisch ein großer Unterschied in der Strukturgeometrie der Aluminiumoxid- und SiSiC-Schwämme festgestellt werden (siehe Abb. 3.1), obwohl die beiden Strukturen mit der gleichen PPI-Zahl und nahezu gleicher Porosität charakterisiert worden sind. Diese unterschiedliche Morphologie hat starke Auswirkungen auf das Strömungsfeld und so auf die Strömungsdispersion.

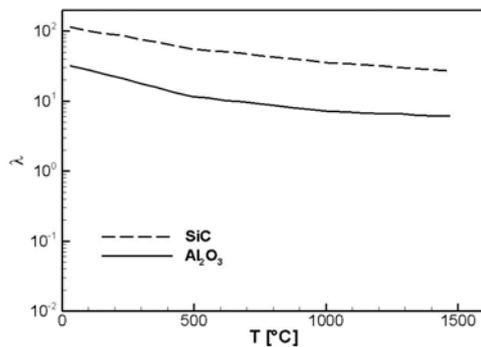


Abbildung 4.19: Temperaturabhängigkeit der Feststoffwärmeleitfähigkeit [171, 172]

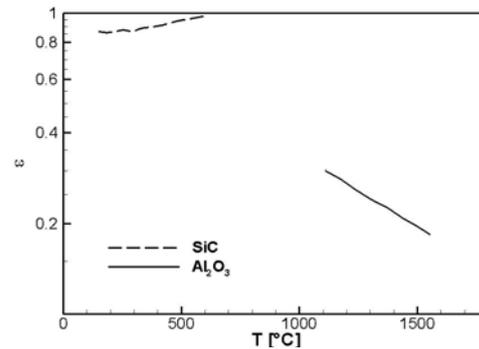


Abbildung 4.20: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenemissivität [13]

Um einen quantitativen Vergleich der Flammenstabilität in allen untersuchten Brennerkonfigurationen zu gewährleisten wird ein dimensionsloser Beschleunigungsfaktor als Verhältnis zwischen der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner und der laminaren Brenngeschwindigkeit wie folgt definiert [106]:

$$FSR = \frac{S_{PIM}}{S_l} \quad (4.10)$$

Die laminare Brenngeschwindigkeit S_l wurde in Kapitel 2.2.1 als die Geschwindigkeit definiert, mit der sich eine planare, eindimensionale Flammenfront relativ zum anströmenden Frischgasgemisch ausbreitet. Diese Geschwindigkeit ist auf den Zustand des unverbrannten Gasgemisches bezogen und stellt einen Fall der Flammenfrontgeschwindigkeit S_F dar, welche die Geschwindigkeit einer Isofläche $c = c^*$ relativ zur Frischgasgeschwindigkeit darstellt. Die Reaktionsfortschrittsvariable, c bezeichnet hierbei eine normierte Temperatur $c = \frac{T - T_U}{T_B - T_U}$. Mit Variation der Reaktionsfortschrittsvariablen c ändert sich die

Flammenfrontgeschwindigkeit von $S_F = S_l$ für $c = 0$ im Unverbrannten bis $S_F = S_{F,R}$ für $c = 1$ im Rauchgas [124]. Analog zur laminaren Brenngeschwindigkeit wird die turbulente Brenngeschwindigkeit auch immer auf den Zustand des Frischgasgemisches bezogen [132, 173]. Darüber hinaus liefert die jahrelange Tradition der Forschung und Anwendung turbulenter Verbrennung eine praxisnahe Empfehlung für die Stabilitätsgrenze der turbulenten Feuerungssysteme die volumetrische Austrittsgeschwindigkeit des aus der Düse austretenden Frischgasgemisches an der Stabilitätsgrenze zu definieren [124, 174]. Somit wird das System mit einer bekannten Größe U_0 , welche auch den maximalen Durchsatz

bestimmt, beschrieben. Diese Größe wird dann in Stabilitätsmodelle eingesetzt und als Skalierungsparameter zur Auslegung ähnlicher Verbrennungssysteme angewandt [175, 176]. Die Charakterisierung des Stabilitätsverhaltens eines Systems durch die Strömungsgeschwindigkeit am Stabilitätspunkt ist ungeeignet, da diese schwer ermittelbar ist und kaum zur Auslegung und Skalierung von Industriebrennern dienen kann.

Die erhebliche Erhöhung der Brenngeschwindigkeit in turbulenten Flammen relativ zu laminaren Flammen kann mit einem stark vereinfachten Modell erklärt werden: Bedingt durch die erhöhte Diffusivität turbulenter Strömungen und die durch die gewinkelte Flammenfront erhöhte Flammenfrontfläche kann eine turbulente Flamme als verdickte laminare Flamme betrachtet werden. Somit werden erheblich höhere Umsatzraten als bei einer laminaren Flamme im gleichen Brenner erreicht. Berechnet man nun eine turbulente Brenngeschwindigkeit als querschnittbezogenen Volumenstrom des unverbrannten Gasgemisches, wird sich zeigen, dass diese aus der verdickten Flammenfront sich ergebende Größe maßgeblich höher als die der entsprechenden laminaren Flamme ist. Analog dazu beruht das Stabilisierungsprinzip eines Porenbrenners auf dem erhöhten Wärme- und Stofftransport, der in einer Verdickung der Flammenfront und somit einer Erhöhung der Brenngeschwindigkeit resultiert (siehe Kapitel 4.2). Gemäß dieser Analogie mit turbulenten Flammen und unter Berücksichtigung der zuvor eingeführten Überlegung wird in der vorliegenden Arbeit die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner S_{PIM} als Anströmgeschwindigkeit (Leerrohrgeschwindigkeit) des unverbrannten Gasgemisches definiert:

$$S_{PIM} = \frac{\dot{m}}{\rho_u A_{schwamm}} = \frac{P_{th}}{H_i^{EG}} \left(\frac{AFR_{stoic}^{EG} \lambda}{\rho_L(p, T_{VW})} + \frac{1}{\rho_{EG}(p, T_{EG})} \right) \quad (4.11)$$

$$\frac{\pi D_{schwamm}^2}{4}$$

In Gl. 4.11 bezeichnet H_i^{EG} den Heizwert des hier als Brennstoff verwendeten Erdgases und AFR_{stoic}^{EG} kennzeichnet das Luft zu Brennstoffverhältnis unter stöchiometrischen Bedingungen. Die FSR-Parameter (Gl. 4.10) wurden mit der in Gl. 4.11 bestimmten Brenngeschwindigkeiten berechnet; sie sind für alle untersuchte Brennerkonfigurationen und Betriebsbedingungen in Tabelle 4.5 gegeben. Obwohl es vom Standpunkt der technischen Relevanz bevorzugt wird, die Stabilitätsgrenze als den querschnittbezogenen Volumenstrom des Frischgasgemisches zu definieren, wird oft in der Literatur das Stabilitätsverhalten eines Porenbrenners mit der effektiven, interstitiellen Frischgasgeschwindigkeit beschrieben [105, 106]. Um einen Vergleich mit schon mangelnden Literaturangaben bezüglich der Flammenstabilität im Porenbrenner (siehe Kapitel 2.2.3) zu gewährleisten, wird hier

noch die Brenngeschwindigkeit S'_{PIM} als interstitielle Geschwindigkeit des unverbrannten Gasgemisches und dementsprechend der FSR' -Parameter wie folgt definiert:

$$S'_{PIM} = \frac{S_{PIM}}{\varepsilon} \quad (4.12)$$

$$FSR' = \frac{S'_{PIM}}{S_l} \quad (4.13)$$

Die ermittelten Werte für FSR' sind zusammen mit zur Auslegung und Skalierung von Porenbrennern relevanten Beschleunigungsfaktoren FSR in Tabelle 4.5 gegeben.

Tabelle 4.5: FSR- und FSR'-Parameter für alle untersuchten Brennerkonfigurationen und Betriebsbedingungen

Brennerkonfiguration	T_{vw} [°C]	λ [-]	FSR [-]	FSR' [-]
K01	25	1,6	5,79	6,82
		1,55	6,72	7,91
		1,5	7,32	8,61
		1,45	7,67	9,02
	350	2,05	4,4	5,18
		2,0	6,73	7,92
		1,9	7,71	9,08
		1,85	9,05	10,65
		1,8	10,13	11,92
	K02	25	1,55	4,7
1,45			4,76	7,02
350		1,95	3,64	4,29
		1,9	5,57	6,56
		1,85	7,02	8,26
K03	25	1,6	5,81	7,27
		1,55	6,71	8,38
		1,5	7,34	9,17
		1,45	7,74	9,67
	350	2,05	4,4	5,51
		1,95	6,13	7,66

		1,9	7,71	9,64
		1,85	9,05	11,32
		1,8	10,13	12,66
K04	25	1,85	7,69	8,83
		1,75	8,41	9,66
		1,65	8,31	9,55
		1,55	7,86	9,04
	85	1,9	6,73	7,73
		1,8	7,50	8,63
		1,7	7,60	8,74
		1,6	7,34	8,44
	350	2,15	5,32	6,12
		2,1	6,45	7,41
		2,0	6,65	7,65
		1,95	7,26	8,35
K05	25	1,9	9,06	10,42
		1,75	8,41	9,66
		1,65	8,31	9,55
		1,55	7,86	9,04
	85	2	9,12	10,49
		1,8	7,50	8,63
		1,7	7,60	8,74
		1,6	7,34	8,44
	350	2,2	5,84	6,72
		2,15	7,08	8,14
		2,05	7,31	8,41
		2,0	7,98	9,17

Um die charakteristischen Zusammenhänge zwischen den Beschleunigungsfaktoren und der Stöchiometrie verschiedener Brennerkonfigurationen zu veranschaulichen, sind die in Tabelle 4.5 gegebenen Daten für die Luftvorwärmtemperatur von 25°C und 350°C in Abb. 4.21 bzw. 4.22 dargestellt. Zusätzlich wurden die entsprechenden, aus den numerischen Simulationen der Methan/Luft-Verbrennung in einem 10 PPI PSZ-Brenner ermittelten Daten aus [106] in Abb. 4.21 gegeben.

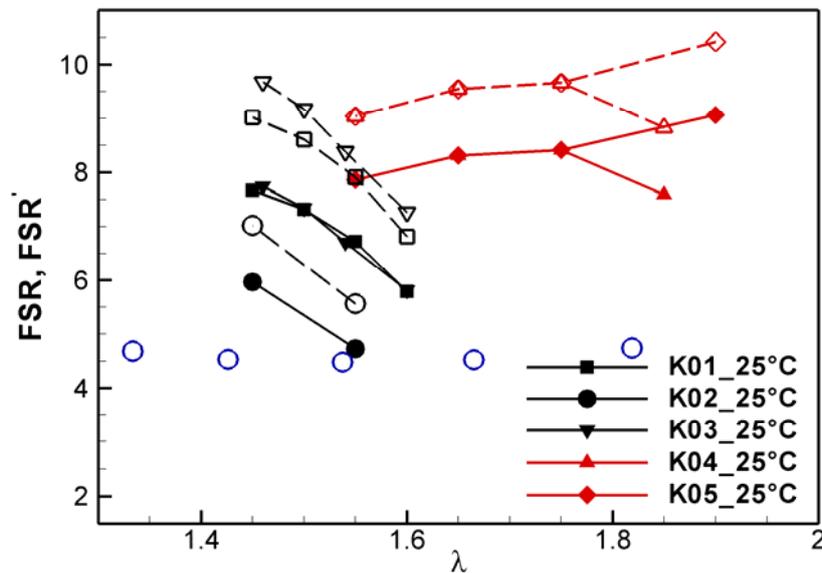


Abbildung 4.21: Vergleich der ermittelten Beschleunigungsfaktoren FSR und FSR' für alle untersuchten Brennerkonfigurationen ($T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$) und Literaturdaten für den PSZ-Schwamm. Symbole: FSR' eines PSZ-Brenners von Barra et al. [106], durchgezogene Linie und volle Symbole: FSR, gestrichelte Linie und leere Symbole: FSR'

Abb. 4.21 und 4.22 zeigen deutlich, dass die Porenbrennertechnik bis zu zehnmal höhere Brenngeschwindigkeiten, relativ zur laminaren Brenngeschwindigkeit, für den untersuchten Luftzahlbereich gewährleisten kann. Die erhebliche Beschleunigung der Flamme in einem Porenbrenner ermöglicht den kommerziellen Brenner kompakter Bauweise und/oder, durch die hohen Luftzahlen resultierende vorgemischte Niedertemperaturverbrennung begleitet von geringen CO - und NO_x -Emissionen. Der Mechanismus der Minderung von CO - und NO_x -Emissionen in Porenbrennern wird näher in Kapitel 4.1.4 erläutert.

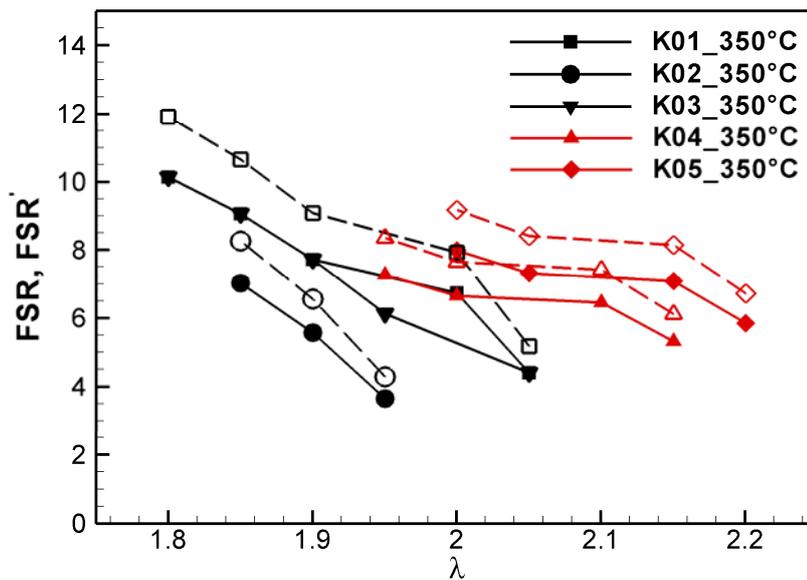


Abbildung 4.22: Vergleich der ermittelten Beschleunigungsfaktoren FSR und FSR' für alle untersuchten Brenner-konfigurationen ($T_{vW}=350^{\circ}\text{C}$). Durchgezogene Linie und volle Symbole: FSR, gestrichelte Linie und leere Symbole: FSR'

Die Definition des Beschleunigungsfaktors über interstitielle Gaskgeschwindigkeit (FSR') führt zu anscheinend höheren Stabilitätsgrenzen (Abb. 4.21 und 4.22) relativ zur tatsächlichen anwendbaren Leistungsdichte. Dieses Verhalten ist am Beispiel des K03-Brenners ersichtlich. Obwohl die gemessenen Stabilitätskurven in Form einer Abhängigkeit zwischen der thermischen Leistung und der Luftzahl für die K01- und K03-Brennerkonfiguration gleich sind (siehe Abb. 4.11 und 4.12), weist der K03-Brenner aufgrund geringerer Porosität (80%) des Schwammes in der Verbrennungszone einen höheren interstitiellen Beschleunigungsfaktor FSR' auf. Somit bietet der K03-Brenner scheinbar eine bessere Flammenstabilisierung, die sich jedoch nur aus der höheren Versperrung des freien Querschnitts ergibt, wobei der technisch relevante erreichbare Durchsatz in beiden, K01- und K03-Brenner, identisch ist. Dementsprechend empfiehlt es sich, die Stabilitätsgrenze eines Porenbrenners auf die Leerrohrgeschwindigkeit zu beziehen.

Die Zusammenhänge zwischen dem Beschleunigungsfaktor und der Luftzahl in unterschiedlichen Schwammtypen (Al_2O_3 und SiSiC) weisen nicht die gleiche Tendenz auf (Abb. 4.21 und 4.22), wie schon bei der Diskussion der Stabilitätsdiagramme erörtert wurde. Alle mit Aluminiumoxid-Schwämmen bestückten untersuchten Brenner zeichnen sich durch einen Abfall des Beschleunigungsfaktors mit Abmagerung des Gasgemisches aus, wobei sich die

Flammenbeschleunigung relativ zur laminaren Flamme in dem SiSiC-Brenner nur geringfügig über den gesamten Luftzahlbereich ändert. Das erkannte Verhalten lässt sich mit unterschiedlicher relativer Wichtigkeit der Wärmeleitung und Strahlung für die Flammenstabilisierung bei unterschiedlicher Stöchiometrie erklären. Bedingt durch die Erhöhung der Prozesstemperatur bei Anfettung des Gasgemisches überwiegt der Einfluss der Strahlung. Eine Erhöhung der Luftzahl führt zu niedrigeren Prozesstemperaturen und zur Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit (Abb. 4.19), wobei der Betrag der Strahlung sinkt. Somit steigt die relative Wichtigkeit des Wärmetransports mittels Wärmeleitung bei mageren brennbaren Gasgemischen. Diese Überlegungen wurden in der in Kapitel 2.2.3 (Abb. 2.42) näher vorgestellten numerischen Studie von Barra et al. [106] bewiesen. Die SiSiC-Brenner zeichnen sich durch hohe Wärmeleitfähigkeit aus, somit wird ein intensiver Wärmerücktransport auch bei hohen Luftzahlen, bei denen der Beitrag der Wärmeleitung dominierend ist, gewährleistet. Im Gegensatz dazu fällt bei Al_2O_3 -Brenner der Beschleunigungsfaktor mit steigender Luftzahl aufgrund des sinkenden Strahlungsbeitrags ab, da die Wärmeleitfähigkeit dieses Schwammtyps sehr gering ist. Zusätzlich weist der Emissionsgrad des Aluminiumoxids eine steile Abhängigkeit der Temperatur (Abb. 4.20) auf, was zur Absenkung des Beschleunigungsfaktors mit steigender Luftzahl im Al_2O_3 -Brenner beiträgt. Einen weiteren Grund für das unterschiedliche Stabilisierungsverhalten der zwei untersuchten Schwammkategorien, Al_2O_3 und SiSiC, stellt der Unterschied in der Strukturgeometrie (unterschiedliche Hersteller) und somit in der Strömungsdispersion dar.

In Abb. 4.21 sind auch die aus den numerischen Simulationen ermittelten interstitiellen Beschleunigungsfaktoren für einen 10 PPI PSZ-Brenner [106] zum Vergleich zur Verfügung gestellt. Der Stabilisierungseffekt des PSZ-Brenners ist eindeutig geringer als bei in der vorliegenden Arbeit untersuchten Brennerkonfigurationen. Der Grund dafür liegt hauptsächlich in deutlich schlechteren Wärmetransporteigenschaften der PSZ-Schwämme im Vergleich zu den Al_2O_3 - und SiSiC-Schwämmen (Tabelle 2.1). SiSiC-Schwämme im Porenbrennereinsatz wurden bezüglich ihrer Flammenstabilität von Diezinger [13] durch die Bestimmung der Flammenposition innerhalb einer konusförmigen Reaktionszone (siehe Kapitel 2.2.3, Abb. 2.31) untersucht. Allerdings wurden die gemessenen Stabilitätsgrenzen als auf den Gaszustand im Stabilitätspunkt bezogene Strömungsgeschwindigkeit gegeben und nicht als basierend auf den Stoffgrößen der Edukte, wie es gemäß der Definition der Brenngeschwindigkeit vorgesehen ist [173, 132]. Dementsprechend führt ein solches Verfahren zu einer Überschätzung der Brenngeschwindigkeit. Deshalb wurde hier kein Versuch gemacht, die in dieser Arbeit experimentell erfassten Beschleunigungsfaktoren mit denen von Diezinger [13] zu vergleichen.

4.1.4 Schadstoffemissionen

Gleichzeitig mit den Flammenstabilitätsuntersuchungen wurde für jeden Betriebspunkt eine Analyse des Rauchgases, wie in Kapitel 3.2.2 erläutert, durchgeführt. Die im nassen Abgas gemessenen Konzentrationen der Stickoxide in allen untersuchten Brennerkonfigurationen (Tabelle 3.3) sind in Abb. 4.23 und 4.24 für die Einlassstemperatur der Verbrennungsluft von 25°C bzw. 350°C dargestellt. Die NO_x-Konzentration ist sehr gering und ähnlich für alle untersuchten Brennerkonfigurationen, da sie hauptsächlich von der Prozesstemperatur abhängt (siehe Kapitel 2.2.2.1). Entsprechend dem bei Hochtemperaturverbrennung über einen breiten Luftzahlbereich dominierenden thermischen Mechanismus der NO-Bildung sind Temperaturen über 1700 K erforderlich um die NO-Bildung wirksam zu aktivieren [131]. Die bei Stabilitätsuntersuchungen nachgewiesenen und durch die intensive Wärmerезirkulation erreichten erweiterten Stabilitätsgrenzen in Porenbrenner ermöglichen eine Niedertemperaturverbrennung bei hohen Luftzahlen, begleitet von geringen NO_x-Emissionen. Die eventuelle Existenz der heißen Gebiete im Temperaturfeld, so genannter „hot spots“, welche für die erhöhten NO_x-Emissionen verantwortlich gemacht werden, ist durch die Tendenz des Schwammes, das Temperaturfeld durch seine ausgezeichneten Wärmetransporteigenschaften zu homogenisieren, verhindert. Die gemessenen Konzentrationswerte für Stickoxide bei einer hohen Luftvorwärmtemperatur ($T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$) sind näherungsweise gleich wie diese aus den Experimenten ohne Luftvorwärmung, da das Temperaturfenster für die jeweilige Schwammkategorie, bedingt durch die maximale Betriebstemperatur, annähernd gleich blieb. Abb. 4.23 und 4.24 zeigen deutlich eine Verringerung der Stickoxid-Emissionen mit steigender Luftzahl aufgrund der sinkenden Verbrennungstemperatur. Der steilen Absenkung der NO_x-Emissionen mit der Luftzahl liegt auch die zusätzliche Verdünnung mit Luft zugrunde, da die Abb. 4.23 und 4.24 die absoluten Werte der gemessenen Konzentrationen zeigen. Um diese scheinbare Reduktion der Stickoxide auszuschließen, wurden die (nass) gemessenen NO_x-Konzentrationen gemäß EU-Richtlinie 2001/80/EC für große Verbrennungsanlagen für den Wassergehalt im Abgas korrigiert d.h. in die auf Volumen des trockenes Abgases bezogene Werte umgerechnet und auf 15% Sauerstoffgehalt (für Gasturbinen) bezogen. Die so ermittelten (trockenen) NO_x-Werte sind in Abb. 4.25 in Abhängigkeit von adiabater Flammentemperatur dargestellt. Die adiabate Flammentemperatur, T_{ad} wurde anhand von den CHEMKIN basierten numerischen Simulationen mit PREMIX Code [120] für den adiabaten Methan/Luft Verbrennungsprozess und die bestimmten Einlassbedingungen ermittelt. Da im Fokus der vorliegenden Arbeit eine Untersuchung der potentiellen Anwendung der Porenbrennertechnik in Pilotbrenner der Gasturbinen steht, wird in Abb. 4.25 der Grenzwert für die NO_x-Emission der Gasturbinen gezeigt. Die

gemessenen Konzentrationswerte der Stickoxide in dem untersuchten Porenbrenner liegen weit unter dem von der Gesetzgebung geforderten Grenzwert.

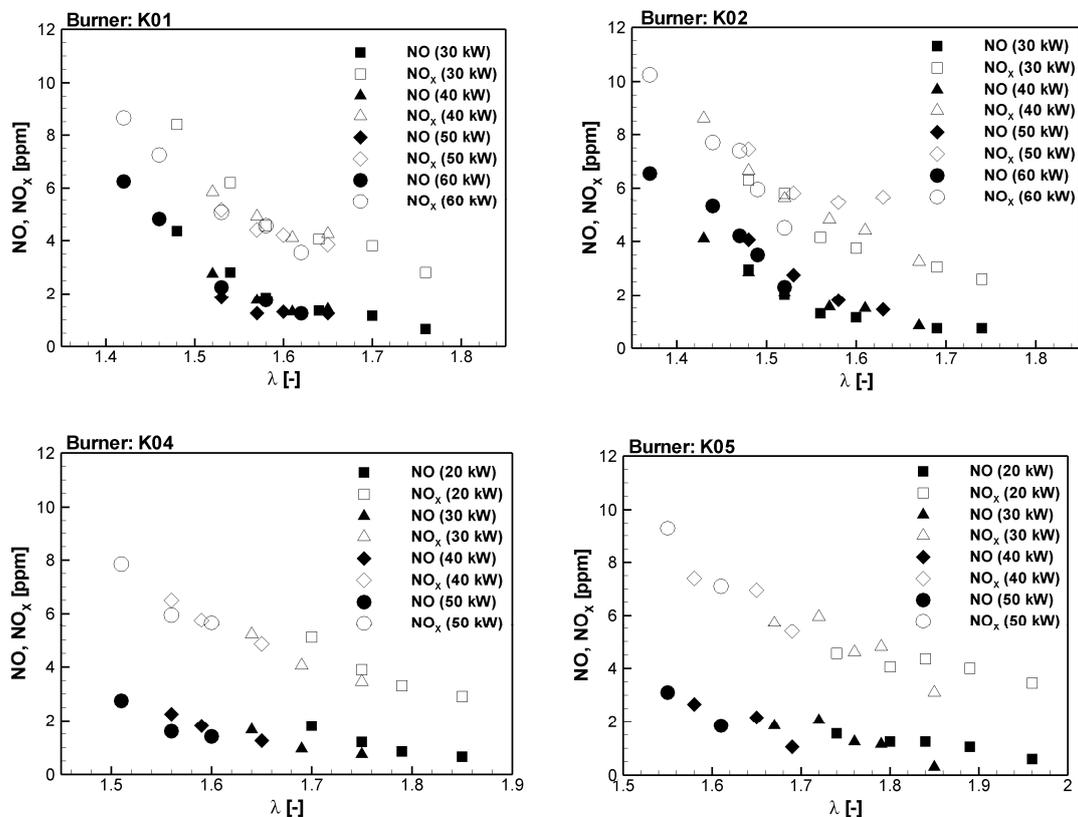


Abbildung 4.23: Die gemessenen NO- und NO_x-Konzentrationen in diversen Brennerkonfigurationen bei einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C

Die Oxidation der Kohlenwasserstoffe in Kohlendioxid während der Verbrennung geschieht durch die Bildung des Kohlenmonoxids als Zwischenprodukt. In Kapitel 2.2.2.2 ist die Reaktionskinetik der Umwandlung von Kohlenmonoxid zu Kohlendioxid näher erläutert. Aus der Gl. 2.87 erkennt man, dass ein eventueller Mangel an Sauerstoff, eine niedrige Prozessstemperatur und/oder kleine Verweilzeit die weitere Oxidation des Kohlendioxids verhindern. Deshalb stellen diese Faktoren die Hauptgründe für die erhöhten CO-Konzentrationen im Rauchgas dar. Im Gegensatz zu den erforderlichen Prozessbedingungen zur Minimierung der NO_x-Bildung erfordert die vollständige Oxidation des Kohlenmonoxids eine erhöhte Prozessstemperatur. Demzufolge ist es notwendig die Prozessstemperatur innerhalb eines Temperaturfensters zu halten, um das Schadstoffemissionsniveau optimal aufrechtzuerhalten. Dieses Temperaturfenster soll eine vollständige Umwandlung von Kohlenmonoxid in Kohlendioxid ermöglichen, aber nicht die Temperatur, welche die NO_x-Bildung begünstigt, überschreiten.

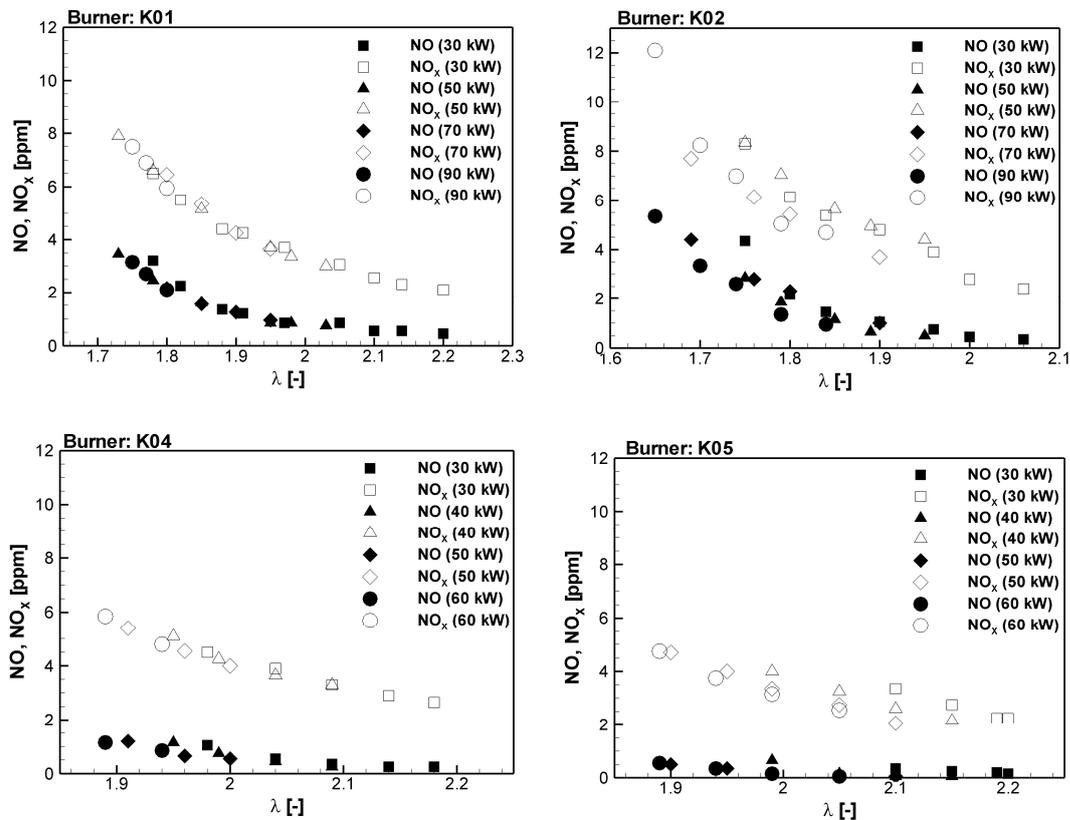


Abbildung 4.24: Die gemessenen NO- und NO_x-Konzentrationen in diversen Brennerkonfigurationen bei einer Luftvorwärmtemperatur von 350°C

Um zu überprüfen, ob der Verbrennungsprozess vollständig innerhalb des Porenbrenners abgelaufen ist, wurde das Rauchgas auch auf den CO-Gehalt untersucht. Die dazugehörigen Daten hinsichtlich der CO-Konzentrationen sind in Abb. 4.26 und 4.27 für die Temperatur der Verbrennungsluft von 25°C bzw. 350°C gezeigt. Es ist ersichtlich, dass ein Porenbrenner unter solchen Bedingungen betrieben werden kann, dass CO- und NO_x-Konzentrationen im Rauchgas sehr gering bleiben. Im ausgelegten Porenbrenner findet der Brennstoffabbrand nur in einer relativ dünnen Zone im Schwamm statt. Die Konversion von CO zu CO₂ erfolgt dagegen in einer relativ breiten Ausbrandzone, da die Länge der heißen porösen Struktur 200 mm beträgt. Somit wird eine ausreichend lange Verweilzeit gesichert, so dass das Kohlenmonoxid effektiv in Kohlendioxid umgewandelt werden kann. Innerhalb des stabilen Betriebsbereichs sind deshalb die gemessenen CO-Konzentrationen annähernd gleich für alle untersuchten Brennerkonfigurationen. Darüber hinaus wurde im Al₂O₃-Brenner unter bestimmten Bedingungen ein schlagartiger Sprung im CO-Gehalt detektiert während der Erhöhung der Luftzahl für eine vorgegebene

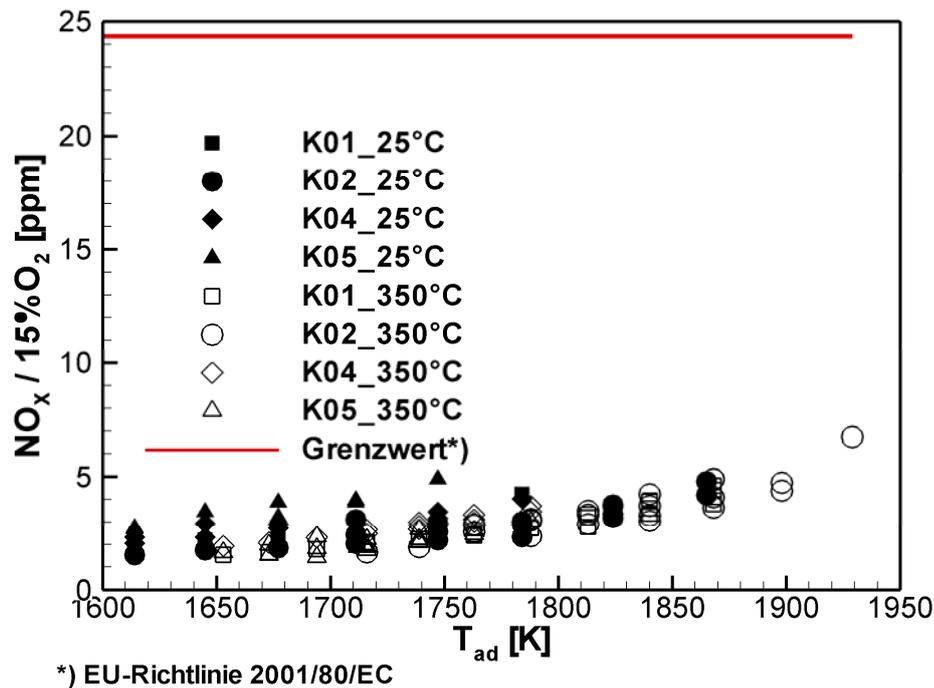


Abbildung 4.25: Die Gemessene NO_x-Emissionen ausgedrückt gemäß EU-Richtlinie 2001/80/EC in Abhängigkeit der adiabaten Flammentemperatur

Leistung. Dies zeigt an, dass der Verbrennungsprozess unvollständig ist und dass die Flammenstabilität nicht mehr innerhalb des Porenbrenners gewährleistet wird. Dieses Phänomen ist im Falle des K02-Brenners bei geringeren Luftzahlen als beim K01-Brenner zu beobachten, was in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Stabilitätsuntersuchungen steht. Wie schon diskutiert, ermöglicht eine breite Ausbrandzone innerhalb des heißen Porenkörpers die vollständige Oxidation des Kohlenmonoxids. Diese befindet sich jedoch trotz der Annäherung an die Abblasegrenze weiterhin innerhalb des heißen Festkörpers der Schwammstruktur. Deshalb ist es nicht möglich, durch Entnahme der Rauchgasprobe oberhalb des Schwammes den eigentlichen, aus der Flammenfront ausstoßenden CO-Gehalt zu bestimmen. Also, um die aus einem unvollständigen Verbrennungsprozess im Schwamm resultierende erhöhte CO-Konzentration zu detektieren, war es nötig die Messung auch nach der Feststellung der Flammeninstabilität mittels Aufnahme des axialen Temperaturprofils weiterzuführen bis die Flamme von der Schwammoberfläche ausgetragen wird. Aus diesem Grunde wurden nicht immer die erhöhten CO-Konzentrationen gemessen.

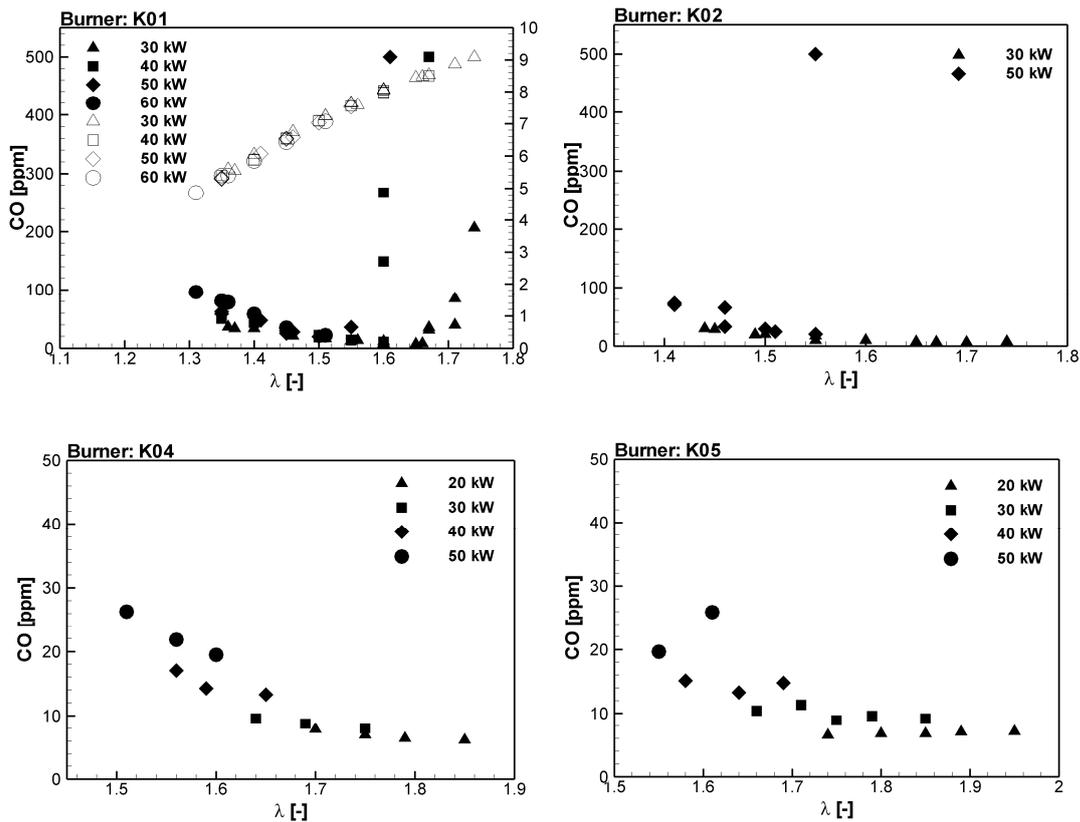


Abbildung 4.26: Die gemessenen CO-Konzentrationen in diversen Brennerkonfigurationen bei einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C

Darüber hinaus, ist es nicht möglich, die schlagartige Erhöhung der CO-Konzentration im Rauchgas als Kriterium zur Bestimmung der Stabilitätsgrenze zu bestimmen, wie es üblicherweise in konventionellen Gasflammen geschehen ist. Dazu wäre es notwendig, im Falle des Porenbrenners das Abgas direkt aus dem Bereich der Reaktionszone abzusaugen. Dies ist jedoch technisch sehr aufwändig, da die gekühlte Absaugsonde innerhalb der porösen Matrix eingesetzt sein muss, wobei sich die Flamme nicht immer an der gleichen Position befindet.

Die in Abb. 4.26 und 4.27 erkennbare Minderung des CO-Ausstoßes mit Abmagerung des brennbaren Gasmisches resultiert aus der Verdünnung des Rauchgases mit der überschüssigen Verbrennungsluft. Aus diesem Grunde wurden die aus den Experimenten ermittelten CO-Konzentrationen auch bezogen auf 15% Sauerstoffgehalt, als Funktion der adiabaten Flammentemperatur in Abb. 4.28 gegeben.

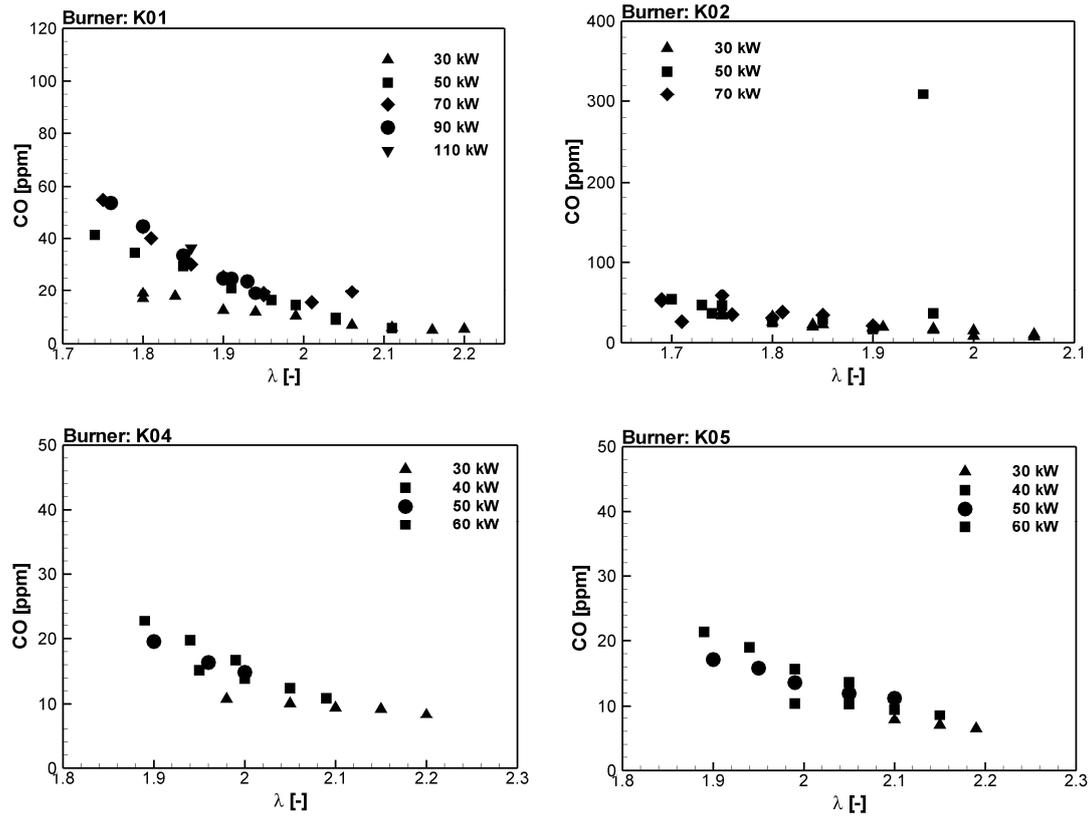


Abbildung 4.27: Die gemessenen CO-Konzentrationen in diversen Brennerkonfigurationen bei einer Luftvorwärmtemperatur von 350°C

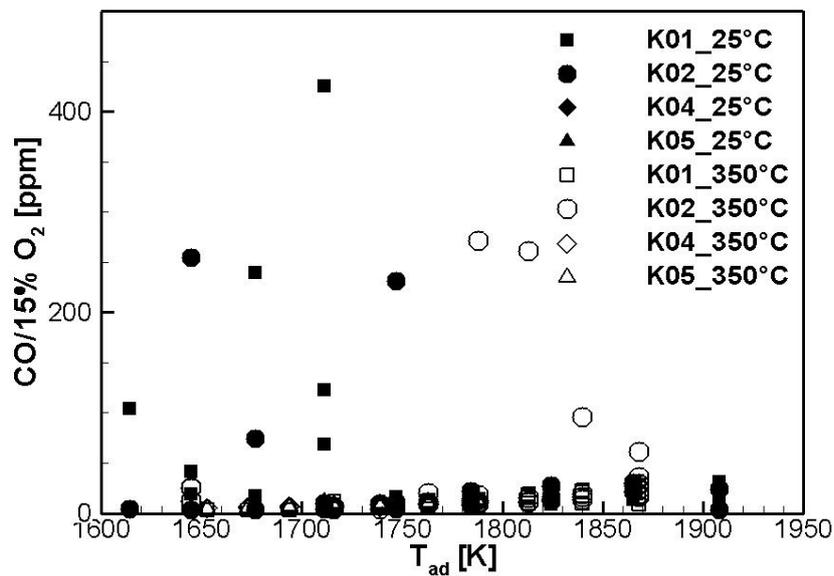


Abbildung 4.28: Die Gemessene CO-Emissionen bezogen auf 15% Sauerstoffgehalt als Funktion der adiabaten Flammentemperatur

4.1.5 Bestimmung der Schwammtemperatur am Brenneraustritt

Die heiße glühende Schwammstruktur am Porenbrenneraustritt (siehe Abb. 3.12) strahlt im Falle der hier untersuchten, unter atmosphärischem Druck betriebenen Anlage ohne Strahlungsschild in die kalte Umgebung, was zu einer Absenkung der Temperatur in Richtung Brennerauslass (siehe Abb. 4.5) führt. Um diesen Wärmeverlust in eine eindimensionale numerische Simulation der Verbrennung in PIM einzubeziehen, wird die Schwammtemperatur am Brenneraustritt als Randbedingung benötigt. Aus diesem Grunde wurde im Rahmen dieser Arbeit die Schwammtemperatur am Brenneraustritt mittels Strahlungspyrometrie für diverse Prozessbedingungen gemessen. Für diese Untersuchung wurden SiSiC-Schwämme mit 10 PPI gewählt.

Das Messprinzip und die Spezifikation des zur vorliegenden Untersuchung verwendeten Quotientenpyrometers wurden zusammen mit dem Messverfahren in Kapitel 3.2.3 ausführlich beschrieben. Das Pyrometer misst die infrarote Strahlungsflussdichte des keramischen Schwammes bei zwei Wellenlängen ($0,95\ \mu\text{m}$ und $1,05\ \mu\text{m}$) und bestimmt die Schwammtemperatur aus dem Quotienten dieser Strahlungsintensitäten, unter der Annahme, dass sich sowohl der Emissionsgrad als auch der Einfluss der Strahlungsabsorption des Wasserdampfes im Abgas in diesem engen Wellenlängen-bereich nicht ändern. Der gleichmäßige Einfluss des Wasserdampfes bei den zwei untersuchten Wellenlängen muss aber während der Messung überprüft werden.

Die Echtzeit-Messung wurde mit Hilfe der kommerziellen Mess- und Visualisierungssoftware CellaMevis (Fa. Keller H,C,W) durchgeführt, welche den zeitlichen Temperaturverlauf bei der jeweiligen Wellenlänge, zusammen mit dem aus dem Quotienten ermittelten tatsächlichen Temperaturverlauf darstellt. Zur Demonstration wurde in Abb. 4.29 ein während der Messung bei 30 kW thermischer Leistung, 350°C Luftvorwärmtemperatur und einer Luftzahl von $\lambda=2,15$ aufgenommener Screenshot der CellaMevis Software dargestellt. Die in Rot bzw. Grün dargestellten zeitlichen Verläufe zeigen die bei der Wellenlänge von $0,95\ \mu\text{m}$ bzw. von $1,05\ \mu\text{m}$ ermittelte Temperatur. Aus der Abb. 4.29 wird ersichtlich, dass die bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen ermittelten Temperaturprofile parallel verlaufen, was darauf hindeutet, dass sich der Einfluss von beiden, unbekanntem Emissionsgrad und Strahlungsabsorption im Rauchgas, im Quotienten aufheben lässt. Darüber hinaus ist die aus dem Quotienten ermittelte Schwammtemperatur immer höher als die entsprechende, bei einer bestimmten Wellenlänge gemessene Temperatur. Dies ist auf den durch die Absorption im Rauchgas verursachten Messfehler bei der monochromatischen Pyrometrie bei hier verwendeten Wellenlängen zurückzuführen, da die Strahlungsabsorption im Rauchgas bei einer

Wellenlänge (0,95 μm oder 1,05 μm) zu einer geringeren gemessenen Temperatur führt.

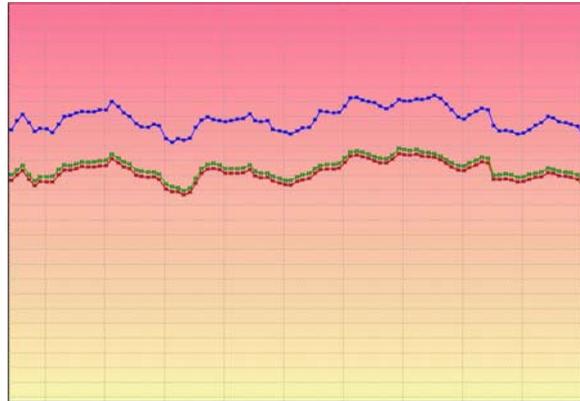


Abbildung 4.29: Mittels Strahlungspyrometrie gemessene zeitliche Temperaturverläufe bei Wellenlängen von 0,95 μm (rot) bzw. 1,05 μm (grün) und aus dem Quotienten ermittelter Temperatur (blau) bei $\lambda=2,15$ und $T_{\text{VW}}=350^\circ\text{C}$

Die Messungen wurden mittels Strahlungspyrometrie für den K04-Brenner (siehe Tab. 3.3) bei diversen Prozessbedingungen (thermische Leistung, Luftzahl, Luftvorwärmtemperatur) durchgeführt. Die ermittelten Messdaten sind in den Diagrammen in Abb. 4.30 bzw. 4.31 für Luftvorwärmtemperatur von $T_{\text{VW}}=25^\circ\text{C}$ bzw. $T_{\text{VW}}=350^\circ\text{C}$ dargestellt. Bei beiden Messreihen ($T_{\text{VW}}=25^\circ\text{C}$ und 350°C) sind die gleichen Tendenzen zu beobachten. Die Schwammtemperatur am Brennerauslass steigt bei einer gleichen Luftzahl mit steigender thermischer Leistung. Dieses Phänomen ist auf die durch die Verkürzung der Verweilzeit bedingte Minderung der relativen Wärmeverluste mit Erhöhung der thermischen Leistung zurückzuführen. Dies stimmt mit dem Befund aus numerischen und experimentellen Untersuchungen in [146] überein.

Eine Erhöhung der Luftzahl resultiert in einer Absenkung der Schwammtemperatur aufgrund der sinkenden Verbrennungstemperatur (Abb. 4.30 und 4.31). Jedoch ist bei höchsten gemessenen Luftzahlen für die jeweilige untersuchte thermische Leistung ein Anstieg der Schwammtemperatur erkennbar. Diesen Bedingungen entspricht die instabile Flamme, welche sich durch eine langsam in Richtung Brenneraustritt bewegende Flammenfront kennzeichnet. In diesem Fall verschiebt sich die Spitzentemperatur in der Gasphase mit der Zeit in Richtung Brennerauslass, was eine Erhöhung der Schwammtemperatur am offenen Ende des Brenners zur Folge hat.

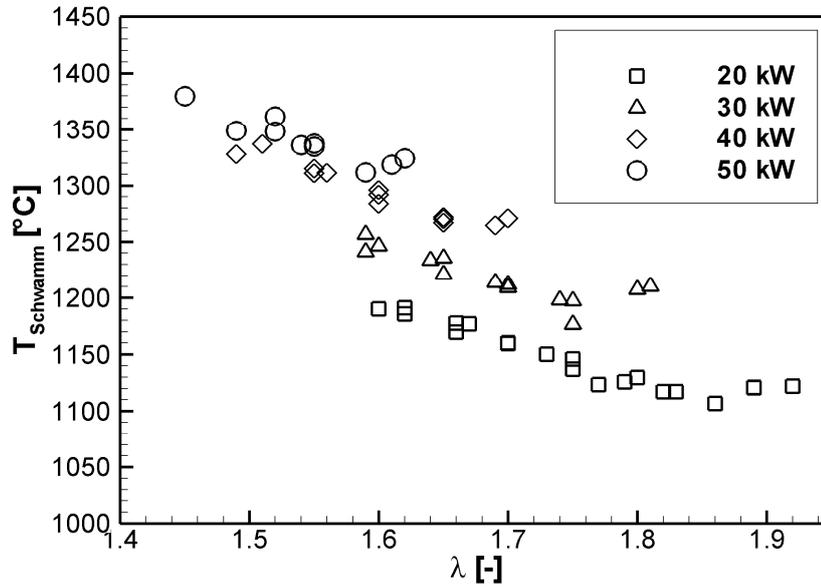


Abbildung 4.30: Gemessene Temperaturen des 10 PPI SiSiC-Schwammes am Brenneraustritt (K04) bei diversen thermischen Leistungen und einer Luftvorwärmtemperatur von $T_{\text{VW}}=25^{\circ}\text{C}$

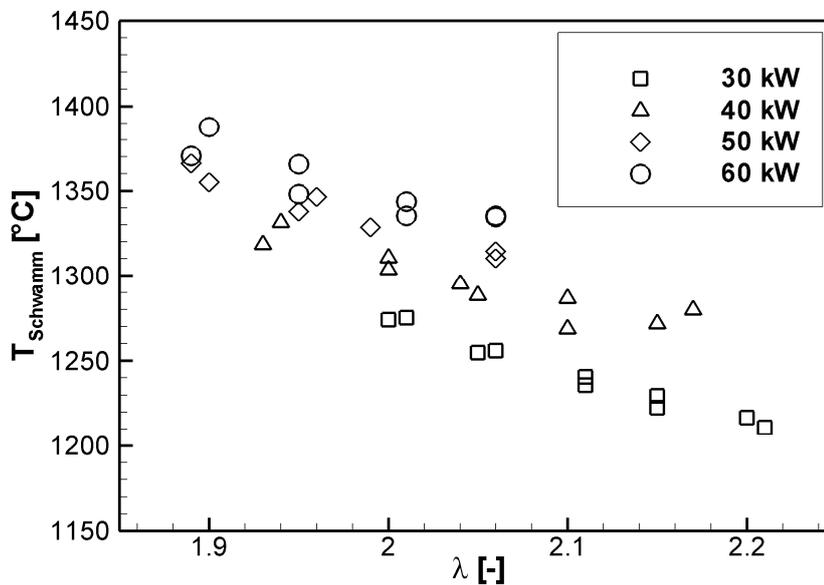


Abbildung 4.31: Gemessenen Temperaturen des 10 PPI SiSiC-Schwammes am Brenneraustritt (K04) bei diversen thermischen Leistungen und einer Luftvorwärmtemperatur von $T_{\text{VW}}=350^{\circ}\text{C}$

4.1.6 Messung der Emissionsprofile innerhalb des Schwammes

Gesamtemissionen eines Porenbrenners stellen einen wichtigen Parameter des Verbrennungssystems dar, lassen aber keine Schlussfolgerungen über den Prozessablauf zu. Wie schon in Kapitel 4.1.4 erläutert, findet der Brennstoffabbrand nur in einer relativ dünnen Zone im Schwamm statt, wobei die Konversion vom innerhalb der Flammenfront gebildeten CO zu CO₂ dagegen in einer relativ breiten Ausbrandzone erfolgt. Hier soll noch einmal betont werden, dass die Länge des in der Verbrennungszone eingesetzten Porenkörpers 200 mm beträgt. Somit wird eine ausreichend lange Verweilzeit gesichert, so dass das Kohlenmonoxid effektiv in Kohlendioxid umgewandelt werden kann.

Die Ermittlung der Schadstoffkonzentrationen im Brennerraum selbst lässt eine Aussage auf den Ablauf der Verbrennungsreaktionen im untersuchten Porenbrenner zu. Diese Untersuchung wurde in einem K04-Brenner (siehe Tab. 3.3) für unterschiedliche Luftzahlen bei einer thermischen Leistung von 20 kW und einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C durchgeführt. Das Messverfahren wurde in Kapitel 3.2.4 näher erläutert.

Die im 10 PPI SiSiC-Porenbrenner ermittelten axialen Konzentrationsverläufe des Kohlendioxids, Sauerstoffs, Kohlenmonoxids und der Stickoxide sind in Abb. 4.32–4.35 dargestellt. Wie in Kapitel 2.2.1 näher diskutiert wurde, erfolgen die chemischen Umwandlungen von Brennstoff zu den Zwischenprodukten H₂ und CO sehr schnell. Die weitere Oxidation von CO zu CO₂ ist im Gegensatz dazu relativ langsam. In Abb. 4.32 ist die sehr breite (ca. 40 mm) Ausbrandzone deutlich zu beobachten. Die Absenkung der CO-Konzentration ist mit entsprechender Erhöhung der CO₂-Konzentration und mit entsprechender Verringerung der O₂-Konzentration verbunden. Diese Zusammenhänge sind bei allen untersuchten Luftzahlen (Abb. 4.32–4.35) zu beobachten, wobei auch eine Verdickung der Flammenfront mit Erhöhung der Luftzahl detektiert wurde. Darüber hinaus zeigt die Abb. 4.35 eine instabile (siehe Abb. 4.13 für K04-Konfiguration), in Richtung Brennerausgang langsam wandernde Flamme. Da die axialen Emissionsprofile bei diesen Betriebsbedingungen ($\lambda=1,9$, 20 kW, $T_{VW}=25^\circ\text{C}$) erst dann aufgenommen wurden, als sich die Flammenfront schon sehr tief innerhalb der 200 mm langen Verbrennungszone (siehe Abb. 3.5) befand, sind die charakteristischen Verläufe in Abb. 4.35 am besten erkennbar: CO-Produktion in der Reaktionszone und seine Umwandlung zu CO₂ in der Ausbrandzone, aber auch der Verbrauch des Sauerstoffs und die Produktion des Kohlendioxids über der verdickten Flammenfront. Weiterhin beweisen die in Abb. 4.35 dargestellten Emissionsprofile, dass die CO-Konzentration im Rauchgas nicht als ein Kriterium für die Flammenstabilität im

Falle des Porenbrenners verwendet werden kann. Obwohl die Flamme unter diesen Bedingungen instabil ist (wandert langsam), fällt die CO-Konzentration in Richtung Brennerausgang aufgrund des langen Aufenthalts des Rauchgases innerhalb des heißen Porenkörpers.

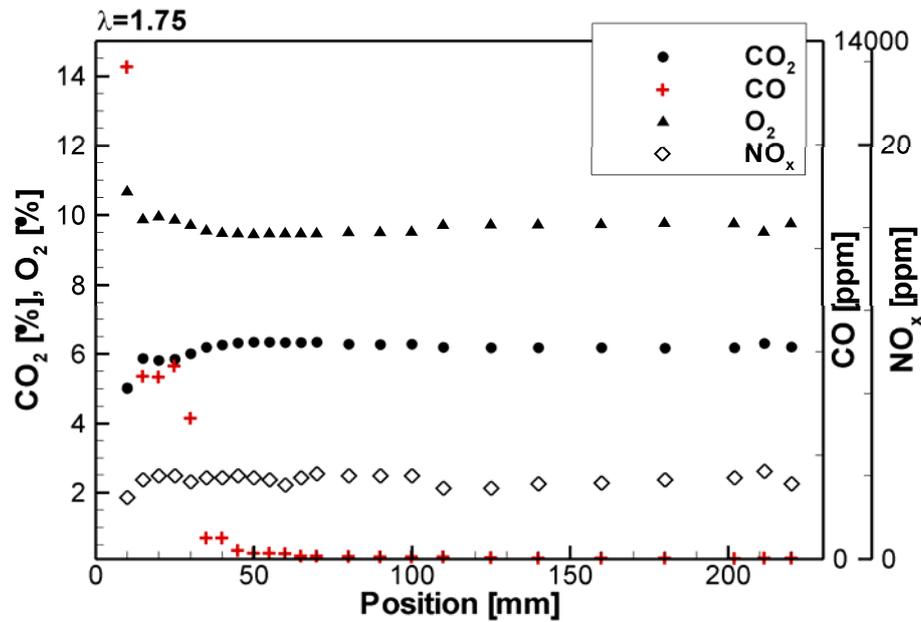


Abbildung 4.32: Axiale Emissionsprofile im 10 PPI SiSiC-Schwamm bei $\lambda=1,75$; 20 kW; $T_{vw}=25^\circ\text{C}$

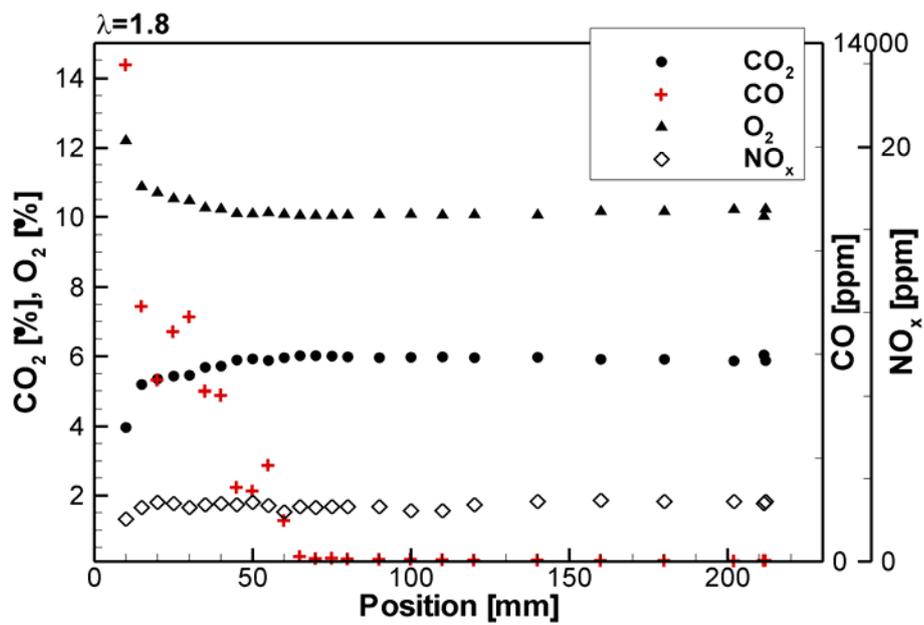


Abbildung 4.33: Axiale Emissionsprofile im 10 PPI SiSiC-Schwamm bei $\lambda=1,8$; 20 kW; $T_{vw}=25^\circ\text{C}$

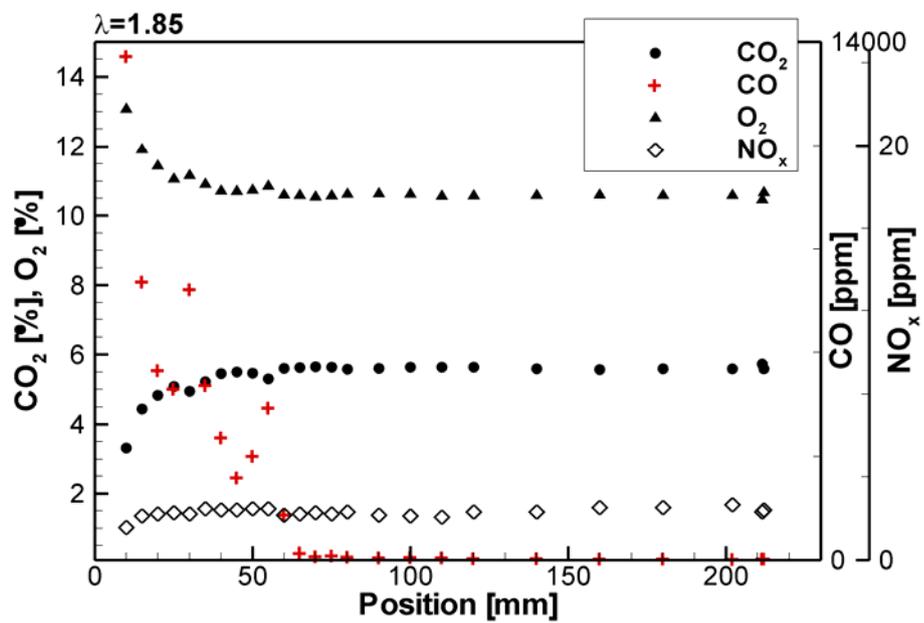


Abbildung 4.34: Axiale Emissionsprofile im 10 PPI SiSiC-Schwamm bei $\lambda=1,85$; 20 kW; $T_{vw}=25^\circ\text{C}$

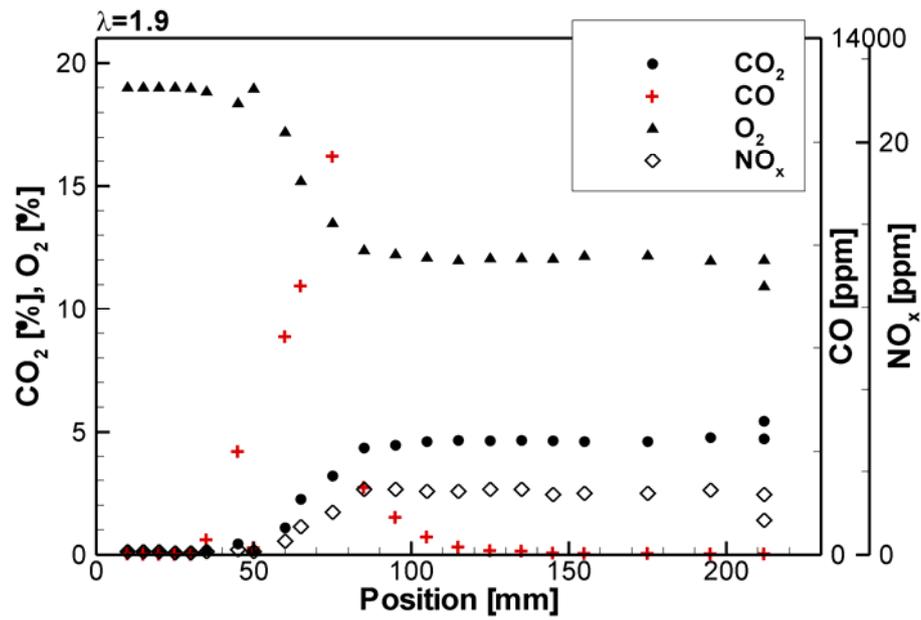


Abbildung 4.35: Axiale Emissionsprofile im 10 PPI SiSiC-Schwamm bei $\lambda=1,9$; 20 kW; $T_{vw}=25^{\circ}\text{C}$

4.2 Numerische 1D-Modellierung der Verbrennung in keramischen Schwämmen

Entwicklung und Optimierung der durch Einsetzen der porösen netzartigen Strukturen ausgeführten Prozesse können deutlich durch die Anwendung der mathematischen Modelle solcher Systeme beschleunigt werden. Andererseits verhindern die geometrische Komplexität und die random Orientierung der festen Phase in festen Schwämmen das Lösen der Transportgleichungen auf der Porenebene für die relevante räumliche Ausdehnung. Die in der Literatur vorhandenen Modelle der Verbrennung in festen Schwämme [13, 106, 158] können die Temperaturprofile und die damit zusammenhängenden NO_x-Emissionen in einem Porenbrenner erfolgreich voraussagen (siehe Kapitel 2.2.3.2). Jedoch können sie nicht die in den Experimenten detektierte beträchtliche Erhöhung der Brenngeschwindigkeit liefern [163]. Eine Ausnahme stellt das von Barra et al. [150, 106] eingeführte Modell der Verbrennung in einem PSZ-Schwamm dar. Die mit diesem Modell berechneten Brenngeschwindigkeiten zeigen eine gute Übereinstimmung mit den entsprechenden Experimenten, sie sind jedoch aufgrund der geringen Wärmeleitfähigkeit und Emissivität der PSZ nur bis zu fünfmal höher als die Brenngeschwindigkeit einer laminaren Gasflamme. Die meisten vorhandenen numerischen Modelle berücksichtigen Wärmeleitung und -strahlung in der festen Phase und vernachlässigen den Beitrag der Strömungsdispersion. Steven et al. [177] testeten ein eigenes Modell der Verbrennung im Porenbrenner mit und ohne Strömungsdispersion und zeigten, dass der Beitrag der hydrodynamischen Dispersion zur Flammenstabilisierung vernachlässigt werden kann. Allerdings wurden hier die Dispersionskoeffizienten numerisch unter Verwendung einer idealisierten Kelvin-Struktur (siehe Kapitel 2.1.1.3) bestimmt. Die Strömung durch solche Strukturen weist sehr stark die Vorzugsrichtungen auf und hat eine deutlich geringere Strömungstortuosität im Vergleich zu den realen Schwammstrukturen [53]. Daher kann über den Unterschied in der Dispersion zwischen einer Kelvin- und einer realen Struktur spekuliert werden.

Motiviert durch die vorherigen Überlegungen wurde als Ziel der vorliegenden Arbeit ein eindimensionales numerisches Modell der Verbrennung in keramischen Schwämmen definiert, welches die experimentell detektierten Flammenstabilitätsgrenzen mit ausreichender Zuverlässigkeit wiedergibt. Darüber hinaus soll ein solches numerisches Modell einen tieferen Einblick in den Flammenstabilisierungsmechanismus im Porenbrenner ermöglichen.

4.2.1 Numerisches Modell

Zusätzlich zur experimentellen Untersuchung wurde die Verbrennung im porösen Medium durch Lösen der eindimensionalen Modellgleichungen berechnet. Als Ausgangsbasis wurde ein auf der Software CHEMKIN basierender Code für die Lösung der Stoff- und Energietransportgleichungen verwendet, in dem die folgenden physikalischen Effekte berücksichtigt sind:

- Wärmeleitung der Gasphase
- Wärmeleitung des Festkörpers
- Wärmeübergang zwischen Gas und Festkörper
- Strahlung des Festkörpers
- Hydrodynamische Dispersion
- Diffusion der Spezies
- Chemische Umwandlung auf der Basis eines detaillierten, chemischen Mechanismus

Das eindimensionale Rechengebiet beträgt mindestens 24 cm und ist adaptiv aufgelöst, wobei sich das Adoptionsverfahren an der maximalen Änderung im Lösungsvektor orientiert. Die folgenden Gleichungen werden vom Code numerisch gelöst:

- Massenbilanzgleichung (Kontinuität) für das Fluid:

$$\frac{\partial(\rho_g u_g)}{\partial x} = 0 \quad (4.14)$$

- Energiebilanzgleichung für das Fluid:

$$u_g \frac{\partial T}{\partial x} - a_g^* \frac{\partial^2 T_g}{\partial x^2} + \frac{\alpha}{\rho_g \cdot c_{p,g}} \cdot \frac{S_v}{\varepsilon} \cdot (T_g - T_s) \quad (4.15)$$

$$+ \frac{1}{c_{p,g}} \cdot \sum_i Y_i \cdot u_{D,i} \cdot c_{p,i} \cdot \frac{\partial T_g}{\partial x} + \frac{1}{\rho_g \cdot c_{p,g}} \cdot \sum_i \dot{\omega}_i \cdot h_i \cdot M_i = 0$$

Gl. 4.15 beinhaltet zusätzliche, für die Verbrennung in PIM charakteristische Parameter wie spezifische Oberfläche der Schwammstruktur S_v und die Porosität ε (siehe Abschnitt 2.1.1.1), aber auch eine effektive Temperaturleitzahl des Gases a_g^* , welche den Effekt der Strömungsdispersion miteinbezieht.

- Energiebilanzgleichung für den Schwamm:

$$\alpha \cdot \frac{S_v}{1 - \varepsilon} \cdot (T_s - T_g) - \lambda_{PIM,eff} \cdot \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} = 0 \quad (4.16)$$

$$\lambda_{PIM,eff} = \lambda_{PIM} + \lambda_r$$

Die Wärmetransportvorgänge in der Feststoffphase mittels Wärmeleitung und Strahlung wurden im vorliegenden Code in einer effektiven Wärmeleitfähigkeit des Feststoffes $\lambda_{PIM,eff}$ in Gl. 4.16 zusammengefasst. Die Modellierung der jeweiligen Größe für die untersuchte poröse Struktur wird im anschließenden Abschnitt erläutert.

- Stoffbilanzgleichungen für das Fluid:

$$\rho_g \cdot u_g \cdot \frac{\partial Y_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho \cdot u_{D,i} \cdot Y_i) - \dot{\omega}_i \cdot M_i = 0 \quad i=1 \dots N_s \quad (4.17)$$

Die Diffusionsgeschwindigkeiten in Gl. 4.17 sind mit der Mischungsgemittelten Formulierung gegeben:

$$u_{D,i} = -D_{im}^* \frac{1}{X_i} \frac{\partial X_i}{\partial x} \quad (4.18)$$

D_{im}^* bezeichnet einen Diffusionskoeffizienten welcher auch den Effekt der Strömungsdispersion miteinbezieht. Für die Berechnungen wurden die auf CHEMKIN basierten Stoffgrößen und thermodynamischen Daten verwendet. Dabei wurde die Dichte über die ideale Gasgleichung für ein Gemisch idealer Gase über folgende Gleichung gerechnet:

$$\rho_g = \frac{p_0}{R T_g \sum_{i=1}^{N_s} \frac{Y_i}{M_i}} \quad (4.19)$$

Die Quell-/Senkenterme $\dot{\omega}_i$ aufgrund der chemischen Reaktionen in den Spezies-transportgleichungen wurden durch die Betrachtung von K elementaren reversiblen Reaktionen ermittelt. Die allgemeine Formulierung solcher Reaktionen ist durch die folgende Gleichung gegeben:



Die Produktionsrate $\dot{\omega}_i$ der i -ten Spezies wird als Summe der Fortschrittsvariablen für alle Reaktionen, welche die i -te Spezies involvieren, definiert:

$$\dot{\omega}_i = \sum_{k=1}^K (\nu'_{ik} - \nu''_{ik}) \dot{r}_k \quad (4.21)$$

Die Fortschrittsrate \dot{r}_k ist ein Maß für den Fortschritt einer reversiblen Reaktion k und stellt daher eine Differenz der Reaktionsgeschwindigkeiten in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung dar:

$$\dot{r}_k = k_{f_k} \prod_{i=1}^{N_s} [X_i]^{v'_{ik}} - k_{r_k} \prod_{i=1}^{N_s} [X_i]^{v''_{ik}} \quad (4.22)$$

Die Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizienten k_{f_k} und k_{r_k} wurden über den modifizierten Arrhenius-Ansatz berechnet:

$$k_{f,r_k} = A_{f,r_k} T^\beta \exp\left[-\frac{E_A}{RT}\right] \quad (4.23)$$

Zur Bestimmung des chemisch-reaktiven Quellterms der Stofftransportgleichungen wurde ein detaillierter Mechanismus nach [121] mit 17 Spezies und 58 Elementarreaktionen verwendet. Dieser Reaktionsmechanismus beinhaltet vor allem die C₁- und C₂-Pfade der Verbrennungsreaktion und hat sich trotz seines relativ einfachen Aufbaus für die Berechnung der laminaren Brenngeschwindigkeit in der Praxis als gut geeignet gezeigt.

Es existieren zwei mögliche Vorgehensweisen bezüglich der Lösung des zur Beschreibung der Verbrennung in PIM verwendeten Differenzialgleichungssystems:

- frei fortpflanzende adiabate Flamme, wobei die Strömungsgeschwindigkeit für die fest gegebene Flammenposition berechnet wird;
- Brenner-stabilisierte Flamme erfasst die Berechnung der Flammenposition für die fest gegebene Strömungsgeschwindigkeit.

Diese zwei Modelle führen zur virtuell identischen Lösung wobei das zweite Verfahren in einigen Fällen Konvergenzprobleme aufweist [102, 178]. Deshalb wurde in der vorliegenden Arbeit das Verfahren der frei fortpflanzenden Flamme verwendet. Als Randbedingungen für die Lösung der Differentialgleichungen müssen am Einlass der Massenstrom, die Stoffmassenbrüche und die Temperatur angegeben werden. Als Auslassrandbedingung werden alle Gradienten mit dem Wert Null vorgegeben, was gemäß dem Erhaltungsgesetz für Enthalpie einen adiabatischen Rand impliziert. Obwohl diese Annahme nicht völlig konsistent mit den Experimenten ist, insbesondere aufgrund der Vernachlässigung der Festkörperstrahlung am Brenneraustritt zur kalten Umgebung, wird sie als eine gute Annäherung für die vorliegende Untersuchung betrachtet, welche einen tieferen Einblick in den Flammenstabilisierungsmechanismus im Porenbrenner ermöglichen soll. Dabei wird die relative Wichtigkeit verschiedener Transportmechanismen für die Flammenstabilisierung im Fokus stehen.

4.2.1.1 Thermophysikalische Parameter der keramischen Schwämme

In Kapitel 2.1 wurde die komplexe und randome Struktur keramischer Schwämme vorgestellt und die vielschichtigen Zusammenhänge zwischen den thermophysikalischen Parametern und der Strukturgeometrie wurden näher erörtert. Bedingt durch den Herstellungsprozess (Replika-Verfahren; siehe Kapitel 2.1.1.1) variiert die Mikrostruktur jeder einzelnen Schwammprobe (siehe Kapitel 2). Die unvollständige Entfernung des überschüssigen Schlickers an zufällig angeordneten Stellen resultiert in einer Verdickung der Stege und/oder dem Schließen von Fenstern (siehe Kapitel 3.1). Diese unkontrollierten lokalen Veränderungen der Mikrostruktur relativ zur Struktur des Polymertemplates haben einen großen Einfluss auf alle thermophysikalischen Parameter der jeweiligen Probe. Im Idealfall sollten daher die Schwammparameter der auch experimentell untersuchten Proben für die numerische Modellierung verwendet werden. Diese Angaben standen jedoch nicht zur Verfügung, so dass die für die numerischen Untersuchungen erforderlichen Schwammeigenschaften aus der Literatur entnommen werden mussten. Zum Teil konnten jedoch aus CT- bzw. MRI-Messungen selbst ermittelte geometrische Merkmale von Proben des gleichen Herstellers (siehe Kapitel 3) verwendet werden.

Die Wärmeleitfähigkeit keramischer Schwämme ist wesentlich geringer als die des entsprechenden nicht porösen Festkörpers, da die Wärmeleitung im Schwamm nicht entlang des kürzesten Weges sondern entlang von durch die festen Stege gebildeten verwundenen (tortuosen) Pfaden erfolgt. Um diesen Effekt zu berücksichtigen, wurde die Wärmeleitfähigkeit des Schwammes λ_{PIM} nach dem Modell von Boomsma und Poulidakos [93] als Funktion der Feststoffwärmeleitfähigkeit λ_s bestimmt (Gl. 4.1).

Der Strahlungsterm in der Energiebilanzgleichung für den Schwamm (Gl. 4.16) wurde mit der Rosseland-Gleichung (Gl. 2.35) modelliert, wobei β den Extinktionskoeffizienten des Schwammes bezeichnet:

$$q_r = \lambda_r \frac{dT}{dx} \tag{4.24}$$

$$\lambda_r = \frac{16 \sigma T^3}{3\beta}$$

Der Wärmeübergang zwischen der Gas- und Feststoffphase wurde mittels der von Younis und Viskanta [112] empirisch ermittelten Korrelationen für die volumetrische Nusselt-Zahl bestimmt (siehe Kapitel 2, Gl. 2.40, 2.41 und 2.42).

$$Nu_V = C Re^m \quad (4.25)$$

Als charakteristisches Längenmaß d_{Nu} für den Wärmeübergang wurde in [112] der reale Porendurchmesser vorgeschlagen und deshalb auch in der vorliegenden Arbeit zur Bestimmung des Wärmeübergangskoeffizienten verwendet.

Der durch die Strömungsdispersion erhöhte axiale Stofftransport wurde in Analogie zu turbulenten Strömungen wie folgt modelliert [72]:

$$\begin{aligned} \frac{D_{im}^*}{D_{im}} &= 0,5 \cdot Pe \\ \frac{a_g^*}{a_g} &= 0,5 \cdot Pe \end{aligned} \quad (4.26)$$

Diese ursprünglich für die Kugelschüttungen bestimmte empirische Beziehung wurde in der vorliegenden Arbeit an die Schwammstrukturen angepasst, indem die Dispersionskoeffizienten mittels einer numerischen dreidimensionalen Simulation der Strömung in der untersuchten Struktur bestimmt wurden (siehe Abschnitt 4.2.1.2).

Die zur Modellierung der Transportvorgänge im Schwamm benötigten geometrischen und physikalischen Parameter wie z.B. λ_s , β , d_{Nu} , d_{Pe} usw. unterscheiden sich für den jeweiligen untersuchten Schwamm (Material, Porendichte, Porosität) und werden für jede durchgeführte Berechnung in den folgenden Abschnitten explizit gegeben.

4.2.1.2 Bestimmung der Dispersionskoeffizienten

Um den Einfluss der hydrodynamischen Dispersion auf den Verbrennungsvorgang im Porenbrenner in das eindimensionale numerische Modell einzubeziehen, müssen zuvor die longitudinalen Dispersionskoeffizienten der untersuchten Schwämme bestimmt werden. Diese Kenngrößen wurden für die untersuchten Schwammstrukturen numerisch ermittelt, da sie stark von der Schwammtopologie abhängig. Sie sind deshalb nicht aus den in der Literatur veröffentlichten und für andere Schwämme ermittelten Daten entnommen worden. Die für die Strömungsberechnung benötigte Schwammgeometrie zur Erzeugung des Rechengitters wurde aus Bilddaten aus MRI- (für Al_2O_3 -Schwämme) bzw. CT-Messungen (für $SiSiC$ -Schwämme) rekonstruiert (siehe [53]).

Für die Bestimmung der axialen Dispersionskoeffizienten wurde eine Methode der Momente eingesetzt. Den Startpunkt dieser Berechnung stellt eine stationäre Luftströmung durch den Hohlraum des Schwammes dar. Ausgehend von der konvergierten stationären Lösung für die Luftdurchströmung als Startbedingung wurde dann eine instationäre Berechnung durchgeführt. Hierbei wurde das einlaufende Fluid sprunghaft von Luft auf reines Stickstoffoxid geändert. Stickstoffoxid wurde aufgrund seiner der Luft ähnlichen Molmasse gewählt. NO wird dann mittels Konvektion und Diffusion durch den Schwamm transportiert. Die zeitliche Entwicklung der Konzentrationsverteilung von NO im porösen Medium wurde ausgewertet. Zur Bestimmung des effektiven Dispersionskoeffizienten wurden eindimensionale Konzentrationsverläufe aus dem dreidimensionalen Mischungsfeld durch eine Flächenmittelung über N zur Hauptströmung senkrechte Querschnittsflächen wie folgt bestimmt:

$$\langle Y_{NO}(x_k, t) \rangle = \frac{\sum_{i=1}^M (Y_{NO,i}(t) \cdot A_i(x_k))}{\sum_{i=1}^M A_i(x_k)} \quad (4.27)$$

$\langle Y_{NO}(x_k, t) \rangle$ kennzeichnet den flächengemittelten NO-Massenbruch in der k -ten Querschnittsebene in der Position x_k und in der Zeit t . $A_i(x_k)$ bezeichnet die Schnittfläche der betrachteten Querschnittsebene mit der i -ten Gitterzelle, M ist die Anzahl der Gitterzellen und $Y_{NO,i}(t)$ ist der NO-Massenbruch in der i -ten Gitterzelle in der Zeit t . Das Ergebnis dieser Vorgehensweise ist eine zeitliche Entwicklung des eindimensionalen Dispersionsfeldes.

Zur Auswertung des effektiven Dispersionskoeffizienten wurde der Gradient des Konzentrationsverlaufs $\partial c / \partial x$ analysiert:

$$\frac{\partial c}{\partial x} = -\frac{1}{\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} \exp\left(-\frac{x'^2}{4tD}\right) \quad (4.28)$$

Hierbei bezeichnet $x' = x - u \cdot t$ eine Ortskoordinate im mit der mittleren Strömungsgeschwindigkeit sich bewegenden Bezugssystem. Unter der Annahme, dass der Konzentrationsgradient (Gl. 4.28) mit einer Gauss-Verteilung beschrieben werden kann, wird der axiale Dispersionskoeffizient durch eine Anpassung der Breite der analytisch ermittelten Gradientkurve an die der berechneten Funktion bestimmt. Der axiale Dispersionskoeffizient wird mit folgender Gleichung berechnet:

$$D_{ax}(t) = 0.5 \frac{\Delta \sigma_{sim}^2(t)}{\Delta t}, \quad (4.29)$$

wobei

$$\Delta\sigma_{sim}^2(t) = \sigma_{sim}^2(t + \Delta t) - \sigma_{sim}^2(t)$$

Zur Berechnung der zeitabhängigen Varianz $\sigma_{sim}^2(t)$ (2. Moment) und des räumlichen Mittelwerts (1. Moment) werden folgenden Gleichungen verwendet:

$$\bar{x}_{sim}(t) = \sum_{k=1}^N \left(\frac{\partial \langle Y_{NO}(x_k, t) \rangle}{\partial x} \cdot x_k(t) \cdot \frac{(x_{k+1}(t) + x_{k-1}(t))}{2} \right) \quad (4.30)$$

$$\sigma_{sim}^2(t) = \sum_{k=1}^N \left(\frac{\partial \langle Y_{NO}(x_k, t) \rangle}{\partial x} \cdot (x_k(t) - \bar{x}_{sim}(t))^2 \cdot \frac{(x_{k+1}(t) + x_{k-1}(t))}{2} \right) \quad (4.31)$$

Eine ausführliche Beschreibung und Validierung des numerischen Verfahrens zusammen mit dem ermittelten Dispersionsverhalten zahlreicher Schwammtypen wurde in [89] veröffentlicht.

Die aus dem zuvor vorgestellten numerischen Verfahren ermittelten axialen Dispersionskoeffizienten der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Schwammstrukturen sind in Abb. 4.36 dargestellt. Die Pe-Zahl wurde für diese Auswertung mit $d_{PPI} = 2/PPI$, wie in [80] empfohlen, definiert. Jedoch wird ersichtlich, dass die ermittelten axialen Dispersionskoeffizienten von den theoretischen, anhand der für die Kugelschüttungen eingeführten Beziehung (Gl. 4.26, [72]) berechneten Werten abweichen. Da in den numerischen eindimensionalen Code schon die mit Gl. 4.26 gegebene Beziehung eingebaut wurde, wurden die tatsächlichen für die untersuchten Schwämme ermittelten axialen Dispersionskoeffizienten durch die Eingabe des als Variable definierten charakteristischen Längenmaßes für den jeweiligen Schwamm eingesetzt. Die Bestimmung des charakteristischen Längenmaßes d_{Pe} erfolgt mit folgender Beziehung:

$$f \cdot Pe_{PPI} = 0,5 \cdot Pe$$

und somit

$$f \frac{d_{PPI} \cdot u}{D_m} = 0,5 \frac{d_{Pe} \cdot u}{D_m} \quad (4.32)$$

wobei f den aus den numerischen Simulationen bestimmten Vorfaktor der mit d_{PPI} definierten Pe-Zahl bezeichnet. Hier muss betont werden, dass die Eingabe des mit Gl. 4.32 bestimmten Längenmaßes das gleiche Ergebnis wie die Eingabe des Vorfaktors hat; sie wurde hier nur wegen des kleineren Aufwands bevorzugt. Also

dient das Längenmaß d_{pe} nur zur Eingabe der berechneten axialen Dispersionskoeffizienten in eindimensionale numerische Simulationen der Verbrennung in PIM und hat keine physikalische Bedeutung. Das zur Simulation der Verbrennung verwendete Längenmaß für die Dispersion des jeweiligen untersuchten Schwammes wurde in Tab. 4.6 angegeben.

Tabelle 4.6: Längenmaß für die Dispersion

Schwamm	PPI	d_{pe} [mm]
SiSiC	10	3,24
SiSiC	20	3,04
Al ₂ O ₃	10	2,0
Al ₂ O ₃	20	1,8

Obwohl das Längenmaß d_{pe} keine geometrische Kenngröße des Schwammes darstellt, ist es ein Maß für die Dispersion in der jeweiligen porösen Struktur. Anhand der in Tab. 4.6 angegebenen Werte kann wieder ein großer Unterschied in der Strukturtopologie zwischen Schwämmen aus unterschiedlichen Werkstoffen beobachtet werden. Die Schwämme aus SiSiC weisen eine deutlich höhere Dispersion als die entsprechenden aus Al₂O₃ hergestellten Strukturen auf. Aus Gl. 4.26 und den in Tab. 4.6 angegebenen Werten wird ersichtlich, dass für beide untersuchten Werkstoffe die Dispersion in einem Schwamm geringerer Porendichte ausgeprägter ist als in einem feinporigeren Schwamm bei der gleichen Strömungsgeschwindigkeit.

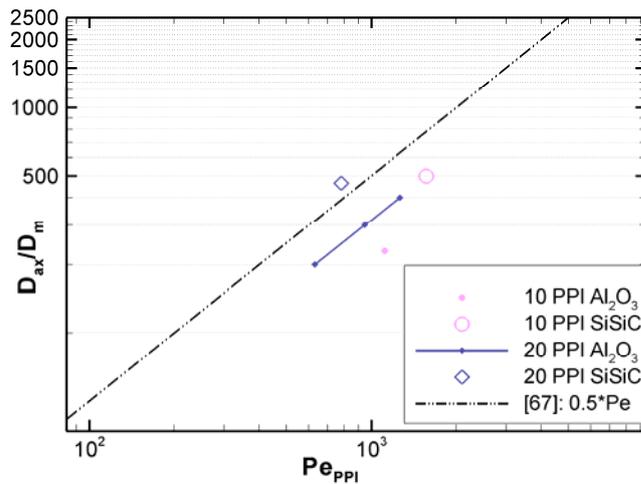


Abbildung 4.36: Die berechneten Dispersionskoeffizienten in Abhängigkeit der Pe-Zahl Pe_{PPI}

4.2.2 Temperaturprofil und Flammendicke

Die charakteristischen Merkmale eines Temperaturprofils, welches sich bei der Verbrennung im keramischen Schwamm einstellt, wurde bereits am Beispiel eines experimentell ermittelten Temperaturverlaufs in Kapitel 4.1.2 diskutiert. Es wurde eine starke Verdickung der Flammenfront im Porenbrenner, bedingt durch die intensive Wärmerезirkulation und durch den erhöhten Massentransport aufgrund der Strömungsdispersion, experimentell detektiert. Dieser Effekt der Flammenverdickung führt zur Erhöhung der Umsatzrate und somit der Brenngeschwindigkeit.

Oft wurde als Validierung der numerischen Simulationen ein Vergleich zwischen dem gemessenen und dem numerisch ermittelten Temperaturverlauf genutzt [103, 104, 158, 160]. Jedoch ist bei den dazugehörigen Grafiken oft erkennbar, dass es eine gute Übereinstimmung zwischen der Messung und der Rechnung nur für das Temperaturmaximum und für die Temperaturabsenkung in Richtung des Brenneraustritts aufgrund der Wärmeverluste durch die Abstrahlung vom heißen Schwamm in die Umgebung gibt. Im Gegensatz dazu wurde das gemessene Temperaturprofil in der Flammenfront entweder nicht dargestellt, oder es zeigt eine deutliche Tendenz der Abflachung vom Temperaturgradienten, was in numerischen Ergebnissen nicht zu beobachten ist [103, 158].

Mit dem in Kapitel 4.2.1 dargestellten Modell wurde der Verbrennungsvorgang in einem 10 PPI SiSiC-Schwamm unter Verwendung der in Tabelle 4.7 gelisteten Schwammparameter simuliert. Ein daraus ermittelter Temperaturverlauf für eine

Luftzahl von 1,7 ist beispielhaft in Abb. 4.37 gezeigt und mit den entsprechenden Messdaten verglichen. Eine gute Übereinstimmung ist hier sowohl bezüglich des Temperaturmaximums als auch für den höchsten Temperaturgradienten in der Flammenfront im Temperaturverlauf erkennbar. Die gute Wiedergabe der Abflachung des Temperaturgradienten in der Flammenfront bei der Verbrennung im Schwamm, welche mit dem vorliegenden Modell erreicht wird, beruht auf der Berücksichtigung des Effektes der Strömungsdispersion, welche in anderen Modellen üblicherweise vernachlässigt wird. Wie schon in Kapitel 4.1.2 erläutert wurde, trägt der erhöhte Massentransport mittels Strömungsdispersion wesentlich zur Abflachung der Temperatur- und Konzentrationsgradienten und zur Verdickung der Flammenfront bei.

Darüber hinaus kann eine Abweichung zwischen den experimentellen Daten und dem numerisch ermittelten Temperaturprofil in der an die Flammenfront anschließende Ausbrandzone beobachtet werden (Abb. 4.37). Dies ergibt sich aus der adiabaten Randbedingung am Auslass des Rechengebietes. Der Strahlungsaustausch zwischen dem heißen Schwamm am Brennerauslass und der Umgebung führt in der Realität zur Absenkung der Temperatur in axialer Richtung, wie am experimentell detektierten Temperaturverlauf zu sehen ist. Malico et al. [160] bestimmten numerisch das Gastemperaturprofil mit und ohne Strahlungsaustausch zwischen dem Schwamm und der kalten Umgebung. Die daraus ermittelten Ergebnisse sind in Abb.2.33 zu sehen. Die größten Abweichungen zur gemessenen Temperatur wurden aufgrund der Abstrahlung vom heißen Schwamm in die Umgebung im Ausbrandbereich nach der Reaktionszone festgestellt. Nur geringfügige Abweichung ist in der Vorwärmzone beobachtet, dennoch waren die maximalen Temperaturen in der Flammenfront fast identisch. Dementsprechend wurde in der vorliegenden Arbeit davon ausgegangen, dass die Voraussetzung der adiabaten Verbrennung keine schwerwiegende Auswirkung auf die Vergleichbarkeit der durchgeführten numerischen Untersuchung mit den experimentellen Befunden hat.

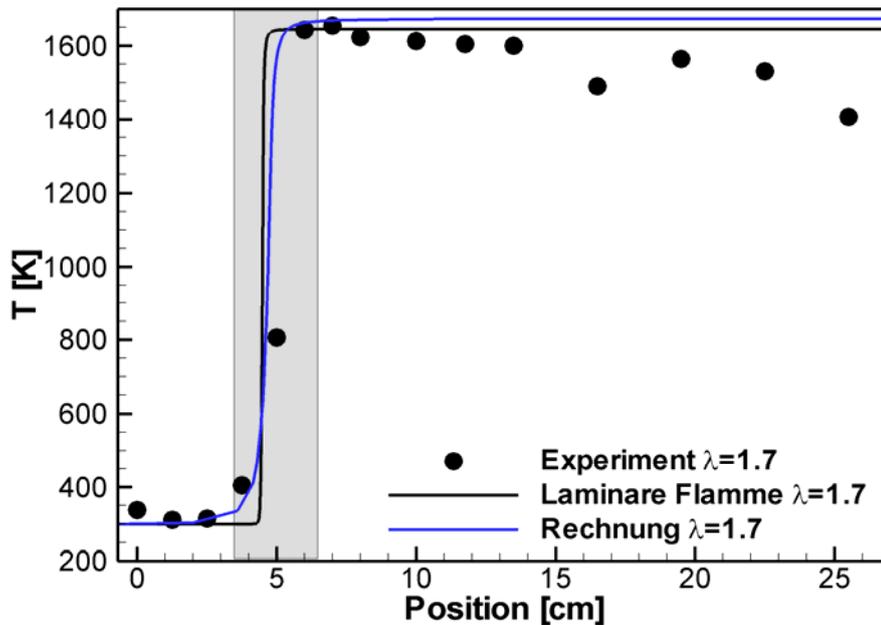


Abbildung 4.37: Experimentell ermitteltes Temperaturprofil in K04 im Vergleich zum numerisch ermittelten ($\lambda = 1,7$; $T_{VW} = 25^\circ\text{C}$) und zur laminaren Flamme ($\lambda = 1,7$; $T_{VW} = 25^\circ\text{C}$)

Darüber hinaus werden die ermittelten Temperaturverläufe mit dem Temperaturprofil einer laminaren Flamme bei gleicher Luftzahl in Abb. 4.37 verglichen. Ein deutlich steileres Temperaturprofil und eine dünnere Flammenfront sind bei der laminaren Flamme zu beobachten, da hier der Wärmetransport nur in der Gasphase erfolgt und die Mischung nur durch molekulare Transportvorgänge (keine Strömungsdispersion) stattfindet. Weiterhin kann hier das im Kapitel 2.2.3 erläuterte Phänomen der superadiabatischen Flamme beobachtet werden, indem die Verbrennungstemperatur im Porenbrenner, bedingt durch den intensivierten Wärme- und Stoffrücktransport, lokal höher wird als die aus der globalen Stöchiometrie ermittelte adiabate Flammentemperatur.

4.2.3 Relative Wichtigkeit verschiedener Transportvorgänge für die Flammenstabilisierung im Porenbrenner

Der Mechanismus der Flammenstabilisierung beruht auch im Porenbrenner auf intensiver Rückführung von Energie durch Wärmeübertragung und die Rückführung hochreaktiver Spezies. Der Mechanismus der Wärmerückführung kann mit dem in

Abb. 4.8 gezeigten vereinfachten Schema demonstriert werden. Wie schon im Kapitel 4.1.3 erörtert wurde, sind Feststoffwärmeleitung, Feststoffstrahlung und Strömungsdispersion die dominierenden und damit bestimmenden Transportprozesse für die Flammenstabilisierung im Porenbrenner. Mit dem Ziel, die relative Wichtigkeit dieser Transportmechanismen für die Flammenstabilisierung im Porenbrenner zu untersuchen, wurden mehrere Modifikationen des im Kapitel 4.2.1 vorgestellten numerischen Modells verwendet (Tabelle 4.8). In jeder Modellmodifikation wurden ein oder mehrere Wärmetransportmechanismen ausgeschaltet und die entsprechende Auswirkung auf die Brenngeschwindigkeit beobachtet. Die Wärmeleitung der Gasphase, der konvektive Wärmeübergang und die Speziesdiffusion wurden in allen untersuchten Modellmodifikationen berücksichtigt. Die numerische Untersuchung wurde für einen 10 PPI SiSiC-Schwamm durchgeführt, und die zur ihre Berechnung verwendeten Schwammparameter sind zusammen mit den entsprechenden Literaturangaben in Tabelle 4.7 gegeben.

Tabelle 4.7: Charakteristische Parameter des untersuchten 10 PPI SiSiC-Schwammes

Parameter	Einheit	Wert	Quelle
ε	%	87	Große et al. [164]
S_V	m^{-1}	473	Große et al. [164]
d_{pe}	mm	3,24	Habisreuther et al. [89]
d_{Nu}	mm	2,18	Große et al. [164]
λ_s	$Wm^{-2}K^{-1}$	40	Schulle [12]
β	m^{-1}	178	Hsu und Howell [90]
C	-	0,146	Younis und Viskanta [112]
m	-	0,96	Younis und Viskanta [112]

Zusammen mit den aus eindimensionalen numerischen Simulationen gewonnenen Temperaturprofilen im Gas und im Schwamm sind Konzentrationsverläufe einiger wichtiger Spezies für alle untersuchten Modellmodifikationen beispielhaft für eine Luftzahl von 1,7 in Abb. 4.38 dargestellt.

Zunächst lässt sich das zugrunde liegende Prinzip der Flammenstabilisierung in Porenbrenner am besten am Beispiel des M₁-Modells (Abb. 4.38) erkennen. In diesem Fall ist der Wärmeübergangsterm zwischen zwei Phasen kleiner als die Wärmerückführung, was einen deutlichen Unterschied zwischen der Gas- (T) und der Schwammtemperatur (TS) zur Folge hat. In der Reaktionszone (siehe Kapitel 2.2.1, Abb. 2.29) ist die Gastemperatur höher als die des Schwammes, und die aus den chemischen Reaktionen freigesetzte Wärme wird, bedingt durch die hohe spezifische Oberfläche des Schwammes, sehr wirksam vom Gas zum Festkörper transportiert. Auf diese Weise wird ein Temperaturgradient in der festen Phase erzeugt, der für einen stromauf gerichteten Wärmetransport -sorgt. Aufgrund dieses Wärmestroms ergibt sich in der Vorwärmzone der Verbrennung eine relativ zum Gas höhere Temperatur des Schwammes und demzufolge ein Wärmeübergang vom Schwamm zum Gas. Diese durch die interne Wärmereizirkulation bedingte zusätzliche Vorwärmung des ankommenden Frischgasgemisches führt zu einem lokalen Anstieg der Verbrennungstemperatur, was wiederum in höheren Brenngeschwindigkeiten und somit in einer Erweiterung des stabilen Betriebsbereichs im Vergleich zu einer laminaren Flamme resultiert. Zur Verdeutlichung ist hier noch mal ausdrücklich zu betonen, dass sich durch die oben beschriebenen Transportprozesse kein Netto-Wärmestrom ergibt, sondern alle diese Vorgänge tragen zum *erhöhten internen Gesamtwärmetransport* bei.

Table 4.8: Untersuchte Modellmodifikationen

	Model	M ₁	M ₂	M ₃	M _{PIM}
Transport- vorgang	Wärmeleitung (Feststoff)	+	+	+	+
	Strahlung (Feststoff)	-	+	-	+
	Strömungs- dispersion	-	-	+	+

Ein Vergleich der Rechenergebnisse aus Modell M₁ und Modell M₂ zeigt den Effekt der durch den zusätzlich berücksichtigten Strahlungswärmetransport erzielten Wärmerückführung. Es ergibt sich eine deutlich höhere Schwammtemperatur in der Vorwärmzone die wiederum zu höherer Vorwärmung des Frischgasgemisches und damit zur Erhöhung der Flammenstabilität führt. Im Vergleich dazu ist ein deutlicher Unterschied in den Verläufen der Temperatur- und Konzentrationsprofile für die Ergebnisse der beiden Modelle zu erkennen, welche die Strömungsdispersion berücksichtigen (M₃, M_{PIM}; Abb. 4.38). Hier fallen die Temperaturprofile für das Gas und den Schwamm, bedingt durch den hohen Wärmeübergang, fast zusammen. Die erhöhte thermische und Stoffdiffusivität führen zur Abflachung der Temperatur- und Konzentrationsprofile, so dass sich der Gastemperaturverlauf dem des

Schwammes annähert und die Temperaturspitze weiter stromabwärts verschoben wird. Diese Abflachung der Temperatur- und Konzentrationsverläufe und als Konsequenz daraus die Verdickung der Flammenfront führt analog zu turbulenten Flammen zu einer Erhöhung der Umsatzrate und damit der Brenngeschwindigkeit, wie schon in Kapitel 4.1.2 und 4.2.2 erörtert wurde.

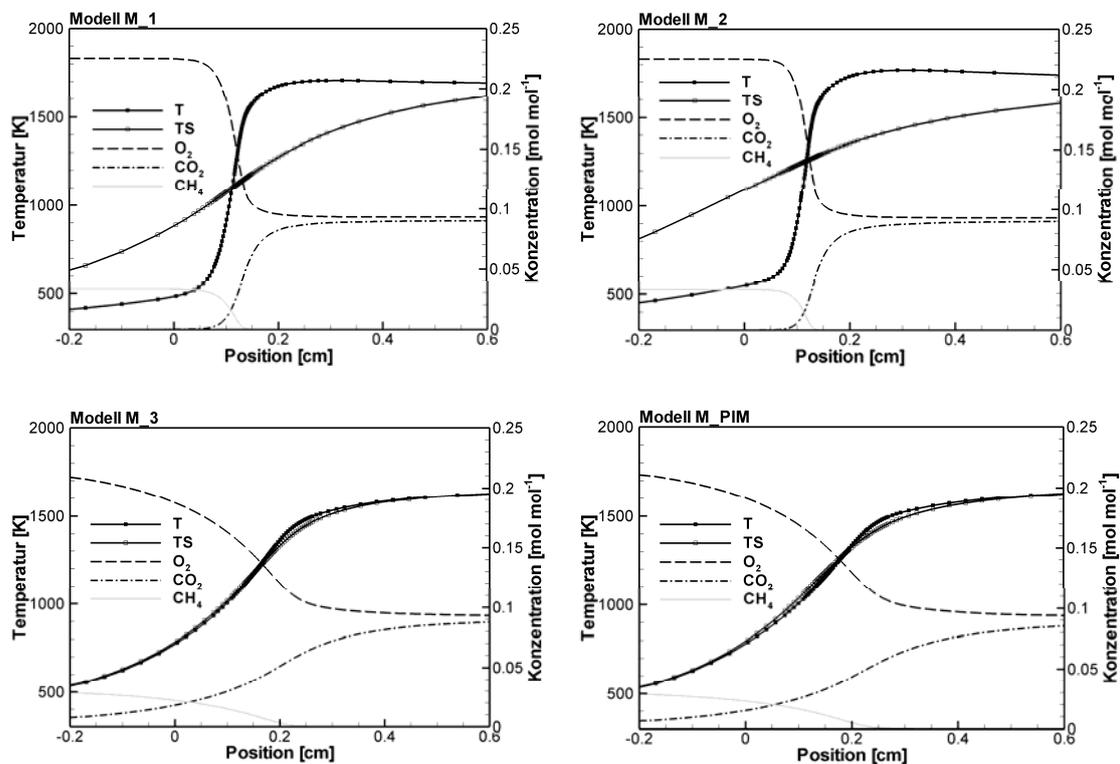


Abbildung 4.38: Temperatur- und Konzentrationsverläufe bei $\lambda = 1,7$ und $T_{vW}=25^{\circ}\text{C}$; TS – Schwammtemperatur, T – Gastemperatur, O₂ – Sauerstoffkonzentration, CO₂ – Kohlendioxidkonzentration, CH₄ – Methankonzentration

Die zuvor erläuterten Phänomene lassen sich mit einer weiteren Analyse des in Abb. 4.39 dargestellten Reaktionsquellterms beweisen. Der Einfluss der erhöhten Wärmerezirkulation aufgrund des zusätzlich berücksichtigten Strahlungstransportes im Modell M₂ relativ zum Modell M₁ äußert sich in einer Erhöhung der Wärmefreisetzung.

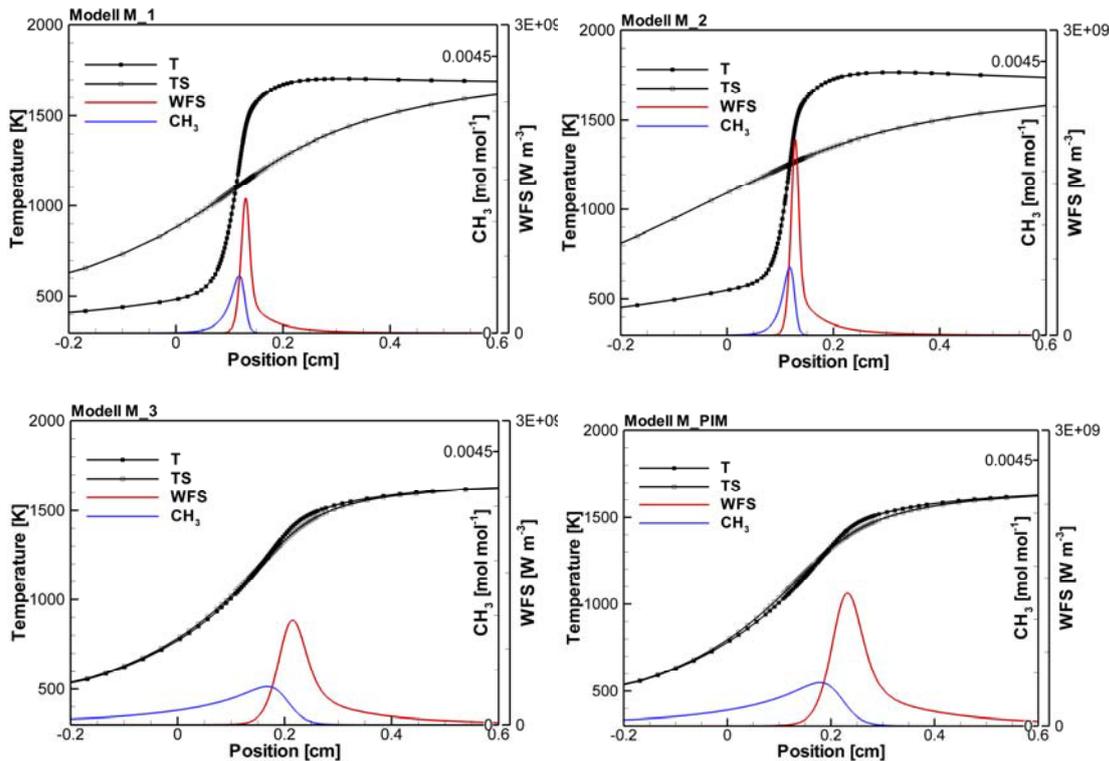


Abbildung 4.39: Reaktionsquellterm und CH₃-Konzentrationsverlauf ($\lambda = 1,7$; $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$)

Ein deutlicher Unterschied im Verlauf des Reaktionsquellterms zwischen Modellen mit (M_3 und M_PIM) und ohne Dispersion (M_1 und M_2) kann in Abb. 4.39 beobachtet werden. Aufgrund des durch die Strömungsdispersion bedingten stark erhöhten Wärmetransports wird das Maximum des Wärmefreisetzungsterms geringer. Dafür aber ist die Zone der Wärmefreisetzung wesentlich dicker und führt zu einem größeren integralen Wert d.h. zu einer höheren Umsatzrate.

Wie in Kapitel 4.1 erläutert, wurden die experimentellen Flammenstabilitätsuntersuchungen für diverse Temperaturen der Verbrennungsluft durchgeführt. Um diesen Effekt auch numerisch zu untersuchen, wurden die zuvor vorgestellten numerischen Simulationen für den gleichen 10 PPI SiSiC-Schwamm (siehe Tab. 4.7) auch mit einer Luftvorwärmtemperatur von $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ durchgeführt. Die daraus ermittelten numerischen Ergebnisse sind in Abb. 4.40 dargestellt.

Generell kann festgestellt werden, dass die auf der Basis der diversen numerischen Modelle ermittelten Temperatur- und Konzentrationsverläufe mit erhöhter Temperatur der Verbrennungsluft von $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ (Abb. 4.40) die gleichen schon diskutierten Tendenzen wie bei der numerischen Simulationen mit $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$ (Abb. 4.38) aufweisen. Jedoch ist im Falle der erhöhten Luftvorwärmtemperatur, relativ zu den Ergebnissen bei der Verbrennung mit einer Luftvorwärmtemperatur von 25°C , eine nochmals stärkere Abflachung der Temperatur- bzw. Konzentrationsgradienten zu beobachten. Gemäß Gleichung 2.67 ist die laminare

Brenngeschwindigkeit stark abhängig von der Temperatur des Frischgasgemisches, wobei sie mit Erhöhung der Luftvorwärmtemperatur steigt. Dies bedeutet, dass bei den Simulationen mit $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ deutlich höhere Strömungsgeschwindigkeiten und damit Brenngeschwindigkeiten erreicht wurden als im Falle von $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$. Darüber hinaus ist die hydrodynamische Dispersion abhängig von der Strömungsgeschwindigkeit (Gl. 4.26). Dies hat aufgrund der höheren erreichbaren Strömungsgeschwindigkeiten im Porenbrenner mit der Erhöhung der Temperatur der Verbrennungsluft auch eine Erhöhung der Strömungsdispersion zur Folge, was wiederum zu einer stärkeren Abflachung der beiden, Temperatur- und Konzentrationsgradienten, führt.

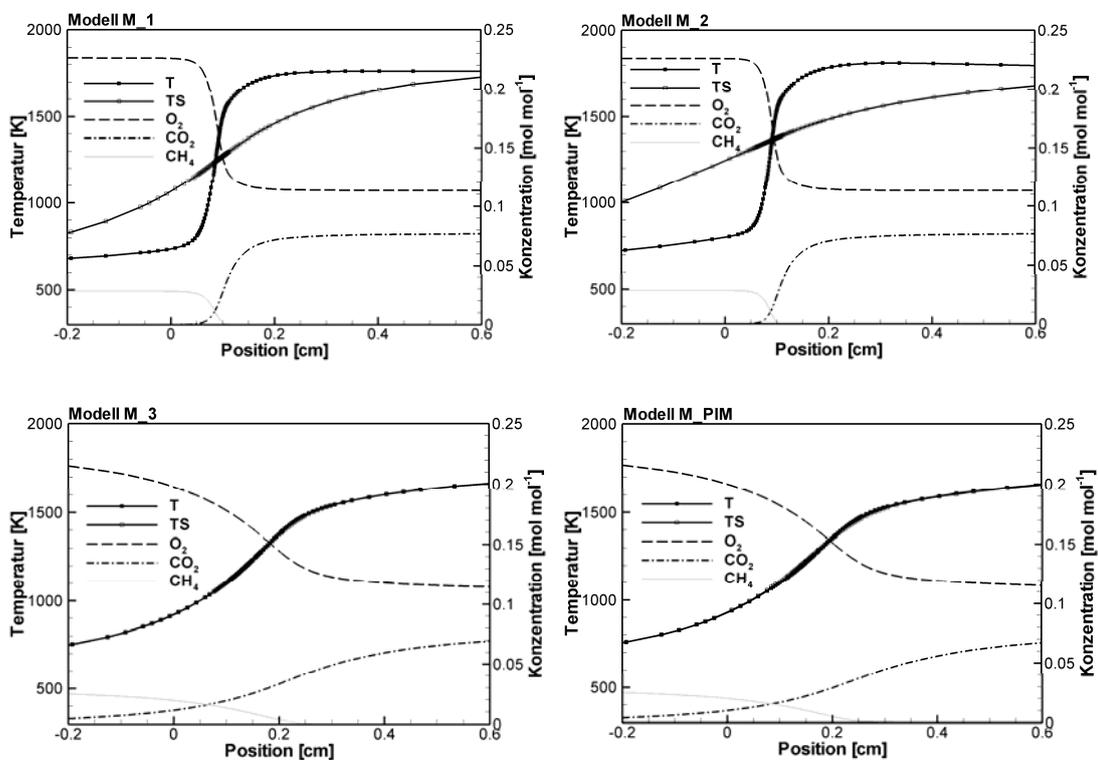


Abbildung 4.40: Temperatur- und Konzentrationsverläufe für $\lambda = 2,0$ und $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$

Die aus den numerischen Simulationen mit erhöhter Luftvorwärmtemperatur $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ gewonnenen Verläufe des Reaktionsquellterms mit allen untersuchten Modellmodifikationen sind in Abb. 4.41 dargestellt. Der schon erörterte Effekt des durch die Strömungsdispersion bedingten intensivierten Wärmetransportes auf den Wärmefreisetzungsterm ist auch hier zu beobachten.

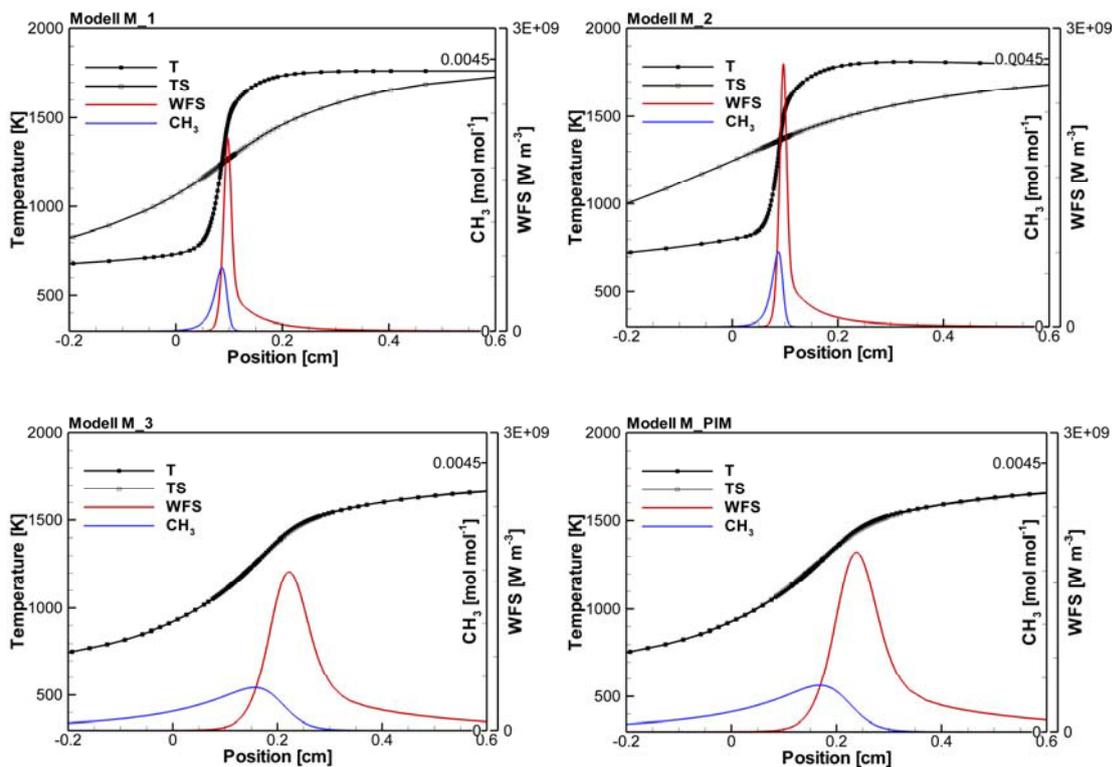


Abbildung 4.41: Reaktionsquellterm und CH_3 -Konzentrationsverlauf für $\lambda = 2,0$ und $T_{\text{VW}}=350^\circ\text{C}$

Um die Auswirkung der betrachteten Phänomene auf die Flammenstabilität zu untersuchen, wurden Rechnungen für alle untersuchten Modifikationen des numerischen Modells (Tabelle 4.8) für eine Reihe der Luftzahlen durchgeführt; die so ermittelten Brenngeschwindigkeiten bei $T_{\text{VW}}=25^\circ\text{C}$ bzw. $T_{\text{VW}}=350^\circ\text{C}$ sind in Abb. 4.42 bzw. Abb. 4.43 dargestellt. Zur besseren Orientierung wurden in beiden Abbildungen auch die entsprechenden Brenngeschwindigkeiten für laminare Flammen dargestellt. Die Brenngeschwindigkeiten der laminaren Flammen wurden mit dem gleichen numerischen Modell durch Ausschalten des Wärmeübergangs zwischen dem Gas und dem Schwamm und somit Entkopplung von Gas- und Feststoffphase bestimmt. Dabei wird auch der Effekt der Strömungsdispersion deaktiviert. Die aus den experimentellen Stabilitätsuntersuchungen ermittelten Brenngeschwindigkeiten für den K04-Brenner (siehe Tabelle 3.3) dienen zusätzlich zur Validierung des numerischen Modells.

Die mit dem Modell M_1 ermittelten Brenngeschwindigkeiten (siehe Abb. 4.42) zeigen zunächst, dass die in diesem Fall nur mittels Feststoffwärmeleitung intensivierte Wärmerezirkulation zur Erhöhung der Brenngeschwindigkeit relativ zur laminaren Flamme führt. Jedoch ist der Beitrag der Wärmeleitfähigkeit des Schwammes zu gering, um die im Experiment ermittelten hohen Brenngeschwindigkeiten zu erreichen. Darüber hinaus resultiert der im Modell M_2 zusätzlich zur Wärmeleitung berücksichtigte Strahlungsbeitrag des Feststoffs in einem weiteren

Anstieg der Brenngeschwindigkeit, bedingt durch die verbesserte Wärmerückführung aufgrund von Feststoffwärmeleitung und -strahlung. Jedoch sind die aus dem Modell M_2 ermittelten Brenngeschwindigkeiten deutlich geringer als die experimentell gemessenen. Außerdem weisen die aus den Modellen M_1 und M_2 erhaltenen Brenngeschwindigkeitskurven annähernd die gleiche Steigung auf, wie diejenige der laminaren Flammen. Da der Gradient der experimentell ermittelten Brenngeschwindigkeit-Luftzahl-Abhängigkeit wesentlich höher ist als derjenige der entsprechenden Funktion für die laminaren Flammen, kann geschlossen werden, dass einige zusätzliche Phänomene, welche die Flammenstabilisierung im Porenbrenner beeinflussen, in diesen Modellen noch nicht berücksichtigt sind. Die gleiche Problematik ist auch in Literaturdaten zu beobachten (z.B. in [104,157]; siehe Abb. 2.32). Allerdings muss für eine solche Aussage zunächst noch die Unsicherheit, welche aus der Verwendung des stark vereinfachten Strahlungsmodells (Rosseland-Gleichung) resultiert, näher erörtert werden. Mendes et al. [102] zeigten, dass die Anwendung der Rosseland-Gleichung zur Modellierung des Strahlungstransports in einem Porenbrenner unter bestimmten Bedingungen höhere Brenngeschwindigkeiten als diejenigen ergeben kann, die bei Anwendung der sehr viel aufwendigeren Diskrete-Ordinaten-Methode resultieren [102]. Diese Aussage steht zunächst nicht im Gegensatz zu der oben gezogenen Schlussfolgerung, dass zum Erreichen der im Experiment gefundenen hohen Beträge der Brenngeschwindigkeit und der resultierenden Steigung der experimentell bestimmten Stabilitätskurve, weitere Transportvorgänge berücksichtigt werden müssen.

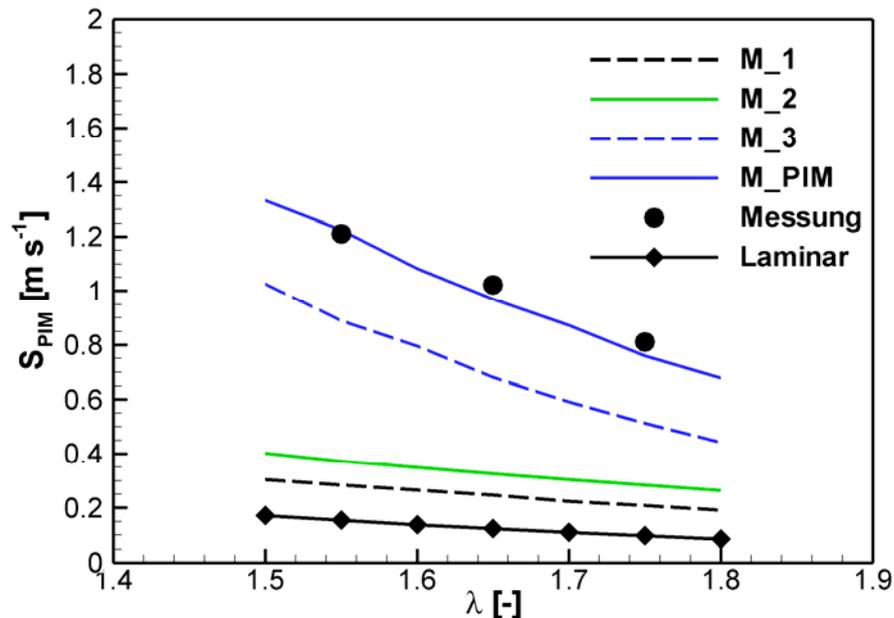


Abbildung 4.42: Vergleich der Voraussagen für die Brenngeschwindigkeit im 10 PPI SiSiC-Schwamm verschiedener numerischer Modellen und experimentell ermittelte Stabilitätsgrenzen ($T_{vw}=25^{\circ}C$)

Anhand der oben durchgeführten Analysen der Temperatur-, Konzentrations-, und Reaktionsquellterm-Verläufe wird deutlich, dass der durch die Strömungsdispersion bedingte Wärme- und Stofftransport eine sehr wichtige Rolle für den Verbrennungsvorgang im Porenbrenner spielt. Wie aus der in Kapitel 2.2 eingeführten ausführlichen Literaturübersicht ersichtlich wird, berücksichtigen im Gegensatz dazu die meisten der bis jetzt veröffentlichten numerischen Modelle für Verbrennung in festen Schwämmen nur die in Modell M_2 eingebauten Transportmechanismen. Eine aktuelle Untersuchung der Verbrennung im Porenbrenner von Steven [179] wurde im Jahre 2008 veröffentlicht und deutet darauf hin, dass das schon oben genannte Problem großer Abweichungen zu experimentellen Daten bei der Vorhersage der Größe der Temperaturgradienten im Bereich der größten Wärmefreisetzung immer noch ungelöst ist. In dieser Veröffentlichung wurde das numerische Modell der Verbrennung in PIM durch Temperaturmessungen mittels kohärenter Anti-Stokes Raman-Streuung validiert. Obwohl die maximale Temperatur in der Verbrennungszone und am Ende der Verbrennungszone des Porenbrenners in Experiment und Simulation relativ gut übereinstimmten, wurde der Temperaturgradient in der Flammenfront in der Simulation wesentlich höher berechnet als er in den Experimenten gemessen. Daraus resultiert auch, dass die experimentell detektierte starke Verdickung der Flammenfront von der Simulation nicht wiedergegeben wurde. Die in der vorliegenden Arbeit durchgeführte Analyse der relativen Wichtigkeit von diversen Wärmetransportmechanismen für den Verbrennungsvorgang im Porenbrenner zeigte, dass das oben genannte Problem hauptsächlich in der Vernachlässigung der Strömungsdispersion im numerischen Gesamtmodell begründet liegt.

Aus den in der vorherigen Diskussion schon genannten Gründen wurde auch der durch die Strömungsdispersion bedingte erhöhte Stoff- und Wärmetransport im porösen Medium zusätzlich berücksichtigt. Die aus diesem mit M_PIM benannten Modell ermittelte Brenngeschwindigkeitskurve (Abb. 4.42) zeigt im Vergleich mit den Ergebnissen der anderen, einfacheren Modelle, dass wiederum die große Steigung der Brenngeschwindigkeit-Luftzahl-Abhängigkeit nur unter Berücksichtigung des Beitrages der Strömungsdispersion zur Flammenstabilisierung erreicht werden kann. Schließlich können so hohe Brenngeschwindigkeiten, wie sie experimentell detektiert wurden, mit einer eindimensionalen numerischen Simulation nur dann ermittelt werden, wenn alle hier untersuchten Wärmetransportmechanismen (Feststoffwärmeleitung, Feststoffstrahlung und Strömungsdispersion) berücksichtigt werden.

Die aus den numerischen Simulationen mit einer Luftvorwärmtemperatur von $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ ermittelten Stabilitätskurven (Abb. 4.43) weisen ein ähnliches wie das schon zuvor bei $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$ diskutierte Verhalten auf. Lediglich der Unterschied zwischen den mit Modell M_2 ermittelten Brenngeschwindigkeiten und denen aus Rechnungen mit dem Modell M_3 wird noch größer. Wie schon erörtert wurde, sind die erreichbaren Strömungsgeschwindigkeiten bei Verbrennung mit erwärmter Luft

($T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$) viel höher als im Falle ohne Luftvorwärmung ($T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$). Dementsprechend wird der Effekt der Strömungsdispersion höher.

Wieder ist erst unter Berücksichtigung aller untersuchten Wärmetransportmechanismen (Leitung und Strahlung in fester Phase und Strömungsdispersion; Modell M_PIM) eine gute Übereinstimmung zwischen den Messdaten und der numerischen Voraussage der Brenngeschwindigkeit zu erreichen.

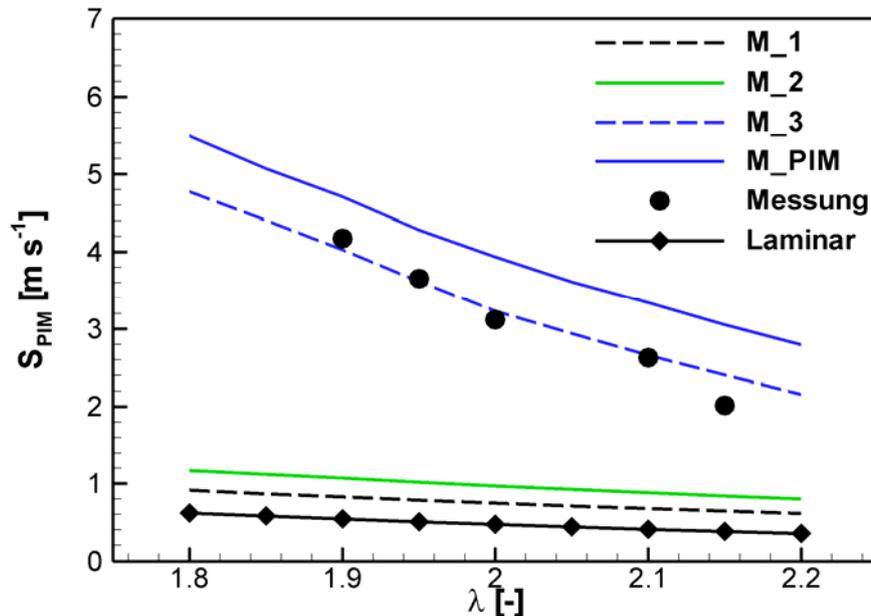


Abbildung 4.43: Vergleich der Voraussagen für die Brenngeschwindigkeit im 10 PPI SiSiC-Schwamm verschiedener numerischer Modelle und experimentell ermittelte Stabilitätsgrenzen ($T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$)

Trotz der guten Wiedergabe des Gradienten der Brenngeschwindigkeitskurve liefert das numerische Modell eine unerhebliche Überschätzung der Brenngeschwindigkeit für die hohe Luftvorwärmtemperatur (Abb. 4.43). Dies kann sowohl nicht exakt den im Experiment vorhandenen Schwammparametern wie z.B. den Extinktionskoeffizienten und der Schwammwärmeleitfähigkeit als auch dem einfachen Strahlungsmodell zugeordnet werden.

Wenn die poröse Matrix bei der Verbrennung im porösen inerten Medium so gewählt ist, dass sie eine effektive Wärmezirkulation bewirkt, kann eine „Überschuss-Enthalpie“ oder „superadiabatische Verbrennungstemperatur“ erreicht werden. Dieses Phänomen wurde ausführlich in Kapitel 2.2.3 behandelt. Dementsprechend werden Verbrennungstemperaturen erreicht, die lokal höher liegen, als die zu den Betriebsbedingungen gehörige, adiabate Flammentemperatur. In diesem Zusammenhang wurden die vier vorgestellten numerischen Modelle auch zur Untersuchung der Flammentemperatur verwendet. Die gewonnenen Ergebnisse

sind in Abb. 4.44 bzw. Abb. 4.45 für die Luftvorwärmtemperatur von $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$ bzw. $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ dargestellt.

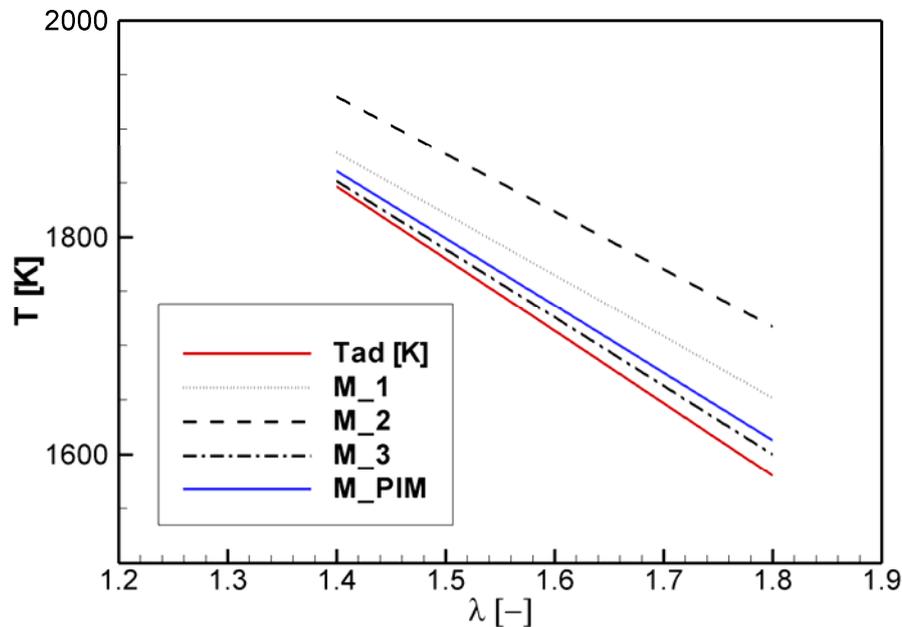


Abbildung 4.44: Gasttemperaturspitze im 10 PPI SiSiC-Schwamm aus verschiedenen numerischen Modellen und adiabate Flammentemperatur ($T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$)

Aus den Abb. 4.44 und 4.45 wird ersichtlich, dass die aus allen untersuchten numerischen Modellen (siehe Tab. 4.8) berechneten Verbrennungstemperaturen höher sind als die im untersuchten Luftzahlbereich zugehörige, adiabate Flammentemperatur. Die mit Modell M_1 berechneten Flammentemperaturen sind aufgrund der Wärmerückführung mittels Feststoffwärmeleitung wesentlich höher als die dazugehörigen adiabaten Flammentemperaturen. Dieser Effekt wird immer ausgeprägter, je magerer das Gasgemisch ist (divergierende Linien für steigende Luftzahl). Dieser Befund steht in Übereinstimmung mit den numerischen Ergebnissen von Hsu et al. [154], wo ein eindimensionales Modell der Verbrennung in einem PSZ-Schwamm (ohne Dispersion) eingesetzt wurde. Genau die gleiche Tendenz wird bei der aus Modell M_2 ermittelten Flammentemperatur-Luftzahl-Abhängigkeit detektiert, wobei im Vergleich mit Ergebnissen aus M_1 die Temperaturbeträge noch höher sind aufgrund der hier effektiveren Wärmereizirkulation (mittels Wärmeleitung **und** Strahlung). Die Berücksichtigung der Strömungsdispersion (Modelle M_3 und M_PIM) führt jedoch zu einer Absenkung der Verbrennungstemperatur, bedingt durch die stark intensivierte effektive thermische Diffusion des Gases. Somit wird, relativ zu den Modellen ohne Dispersion, die aus der Reaktion freigesetzte Wärme noch besser stromaufwärts transportiert, was in einer Minderung der Temperaturspitze resultiert.

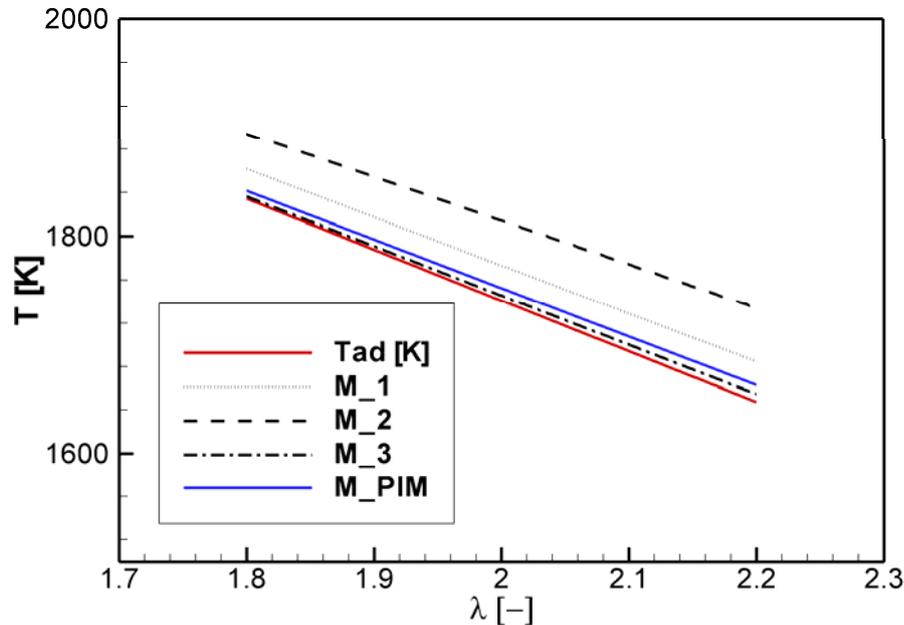


Abbildung 4.45: Gastemperaturspitze im 10 PPI SiSiC-Schwamm aus verschiedenen numerischen Modellen und adiabate Flammentemperatur ($T_{vW}=350^{\circ}\text{C}$)

Als Folge davon wird eine dickere Vorwärmzone erzeugt und dementsprechend eine effektivere Vorwärmung des ankommenden Frischgasgemisches erreicht. Aus diesem Grunde wird bei Verwendung der Modelle mit Dispersion eine deutlich höhere Brenngeschwindigkeit erreicht als im Vergleich dazu bei Verwendung der Modelle ohne Strömungsdispersion. Bei Modell M_PIM wurden, bedingt durch den zusätzlich berücksichtigten Wärmetransport mittels Feststoffstrahlung, noch etwas höhere Flammentemperaturen im Vergleich zu denen aus Modell M_3 erhalten.

Die zuvor diskutierten Zusammenhänge zwischen Verbrennungstemperatur und den für die Flammenstabilisierung relevanten Wärmetransportmechanismen im Porenbrenner sind auch bei den berechneten Flammentemperatur-Luftzahl-Abhängigkeiten mit einer Luftvorwärmtemperatur von $T_{vW}=350^{\circ}\text{C}$ zu sehen (Abb. 4.45). Darüberhinaus zeigen die in Abb. 4.44 und 4.45 dargestellte Diagramme, dass der untersuchte Temperaturbereich (bedingt durch den untersuchten Luftzahlbereich) unabhängig von der Luftvorwärmtemperatur gleich blieb. Diese Tatsache ist wichtig bei der in diesem Zusammenhang oft aufgeführten Analyse des Einflusses der temperaturabhängigen Parameter auf die Flammenstabilität.

4.2.3.1 Relativer Beitrag des Stofftransports gegenüber dem Wärmetransport mittels Strömungsdispersion

Das numerische Modell der Verbrennung in festen Schwämmen berücksichtigt den Effekt der hydrodynamischen Dispersion auf beide, Wärme- und Stofftransport. Aus der zuvor durchgeführten Analyse ergab sich, dass sich die Auswirkung der Strömungsdispersion auf den Verbrennungsvorgang in der Intensivierung des Wärmetransportes in der Gasphase spiegelt. Eine numerische Untersuchung des relativen Beitrags des Stofftransports gegenüber dem Wärmetransport mittels Strömungsdispersion wurde durchgeführt, indem die Speziesdiffusionskoeffizienten D_{im}^* gemäß der Gleichung 4.26 modelliert wurden. Hierbei blieb aber die Temperaturleitzahl a_g^* gleich der des Gases a_g . Dieses Modell wurde als M_PIM^{SD} bezeichnet. Die aus dieser Untersuchung für den K04-Brenner und eine Beispielluftzahl von $\lambda=1,55$ und Luftvorwärmtemperatur $T_{vw}=25^\circ\text{C}$ ermittelte Brenngeschwindigkeit ist in Tab. 4.9 gegeben und sowohl mit der mit dem Modell M_PIM berechneten Brenngeschwindigkeit als auch mit der der laminaren Flamme verglichen.

Tabelle 4.9: Der Beitrag des erhöhten Stofftransport aufgrund der Strömungsdispersion (K04-Brenner; $\lambda=1,55$; $T_{vw}=25^\circ\text{C}$)

Modell	M_PIM	M_PIM ^{SD} (Nur Stoffdispersion)	Laminare Flamme
Brenngeschwindigkeit [m s ⁻¹]	1,225	0,2756	0,1538

Die Erhöhung des Stofftransports aufgrund der Strömungsdispersion resultiert in einer Steigerung der Brenngeschwindigkeit relativ zur laminaren Flamme. Jedoch ist dieser Anstieg geringfügig im Vergleich zu der Brenngeschwindigkeit, welche mit dem numerischen Modell M_PIM berechnet wurde, wo der Effekt der Dispersion auf beide, Wärme- und Stofftransport berücksichtigt wurde. Zur Veranschaulichung der Transportvorgänge in Modelle M_PIM und M_PIM^{SD} wurden in Abb. 4.46 die Verläufe der Temperatur, des Reaktionsquellterms und der CH₃-Konzentration dargestellt. Die Stoffdispersion im Modell M_PIM^{SD} führt zu einer Ausweitung des CH₃-Verlaufs. Jedoch ist das Gastemperaturprofil aufgrund der vernachlässigten

Wärmedispersion wesentlich steiler als im Modell M_PIM . Demzufolge ist der Wärmefreisetzungsterm wesentlich kleiner als der im Modell M_PIM , was wiederum in bedeutsam geringerer Brenngeschwindigkeit resultiert. Darüber hinaus ist der Wärmeübergang in M_PIM^{SD} gering im Vergleich zu M_PIM , da die eingesetzte Strömungsgeschwindigkeit, bedingt durch die geringe Brenngeschwindigkeit, deutlich kleiner ist. Dies spiegelt sich in großer Temperaturdifferenz zwischen dem Gas und dem Schwamm.

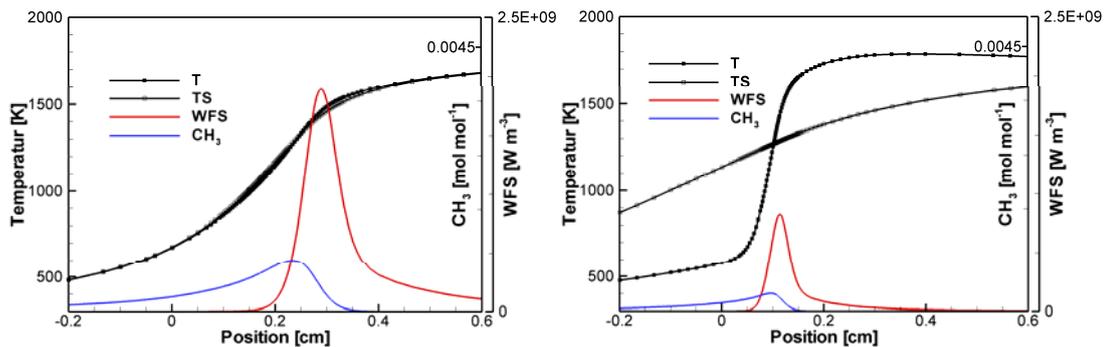


Abbildung 4.46: Verläufe der Gas- und Schwamm-Temperatur, der CH_3 -Konzentration und der Wärmefreisetzung im K04-Brenner bei $\lambda = 1,55$ und $T_{VW} = 25^\circ C$: M_PIM (links) und M_PIM^{SD} (rechts)

4.2.3.2 Sensitivität der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner auf Änderung des Extinktionskoeffizienten

In Kapitel 2.1 wurde ausführlich diskutiert, dass die thermophysikalischen Parameter fester Schwämme sehr stark von der Topologie der Struktur abhängig sind und deshalb statistisch streuen auch für die Schwämme gleicher Nenncharakteristiken (PPI-Zahl, Porosität). Die zur Modellierung der Verbrennung in keramischen Schwämmen benötigten Parameter waren für exakt die gleichen, im Experiment verwendeten Proben nicht verfügbar. Deshalb wurden die meisten Parameter aus den in der Literatur verfügbaren Modellen extrahiert (siehe Tab. 4.7), jedoch unter Anwendung der tatsächlichen, mittels CT-Messungen ermittelten geometrischen Daten (S_V , ϵ , d_{pore}).

Zur Bestimmung des effektiven Extinktionskoeffizienten wurde die von Hsu und Howell [90] vorgeschlagene empirische Korrelation (Gl. 2.38) verwendet. Der Extinktionskoeffizient eines Schwammes erhöht sich mit sinkender Porengröße, d.h. die Wärme wird mittels Strahlung nur auf kleinere Entfernung übertragen. Deshalb

wird die Wirkungszone der Strahlungsübertragung im Porenbrenner mit sinkender Porengröße immer dünner, was zur Abnahme des Vorwärmeeffekts durch Strahlung auf das Frischgasgemisch führt. Demzufolge sinkt die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner mit steigendem Extinktionskoeffizienten.

Da eine gewisse Unsicherheit bei Anwendung des Literaturmodells zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten besteht, wurde zunächst eine Sensitivitätsanalyse auf der Basis des zuvor vorgestellten numerischen Modells und den in Tab. 4.7 gegebenen Parametern für den 10 PPI SiSiC-Schwamm durchgeführt. Hierbei wurde die Brenngeschwindigkeit für eine Reihe von Extinktionskoeffizienten und für eine Beispielluftzahl von 1,55 berechnet. Die berechneten Brenngeschwindigkeiten sind als Ergebnis dieser Analyse in Abb. 4.47 dargestellt.

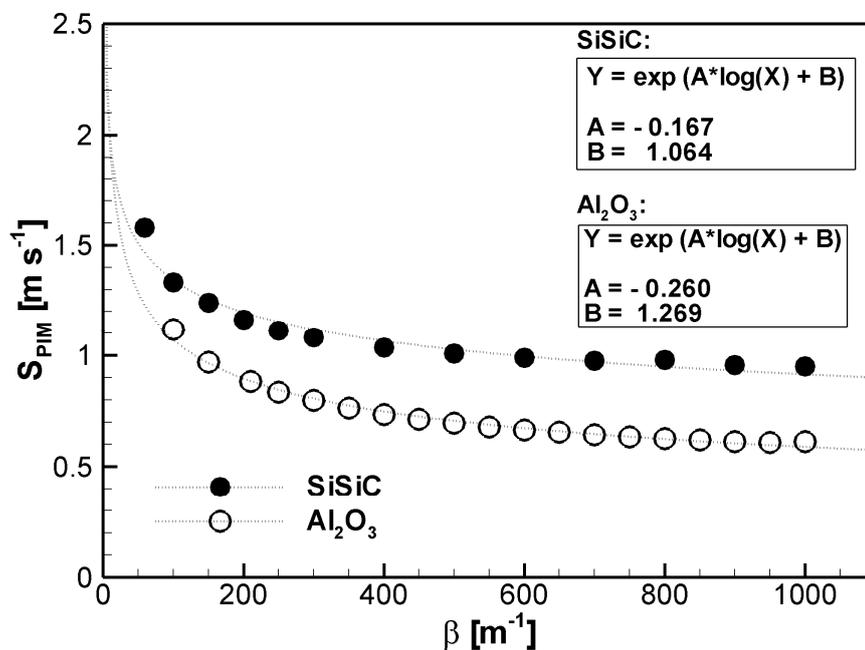


Abbildung 4.47: Abhängigkeit der berechneten Brenngeschwindigkeit von den Extinktionskoeffizienten für den 10 PPI SiSiC- und den 10 PPI Al_2O_3 -Schwamm ($\lambda=1,55$; $T_{\text{vw}}=25^\circ\text{C}$)

Aus Abb. 4.47 wird ersichtlich, dass die Abnahme der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner im untersuchten Bereich bei Erhöhung des Extinktionskoeffizienten entsprechend einer Potenz-Funktion erfolgt. Für die Schwämme mit vergleichsweise geringen Extinktionskoeffizienten ändert sich die Brenngeschwindigkeit mit Änderung des Extinktionskoeffizienten erheblich. Im Gegensatz dazu ist die Brenngeschwindigkeit in Schwämmen, die einen hohen Extinktionskoeffizienten aufweisen, nur schwach von seinem Betrag abhängig. Allerdings ist die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner nicht nur eine Funktion des Extinktionskoeffizienten, sondern ist auch von anderen Wärmetransport-

eigenschaften des Schwammes wie z.B. der Wärmeleitfähigkeit und dem charakteristischen Längenmaß für die Dispersion abhängig. Analog dazu wurde deshalb die numerische Untersuchung auch für den 10 PPI Al_2O_3 -Schwamm mit den in Tab. 4.11 gegebenen Parametern durchgeführt. Die gewonnenen Ergebnisse sind in Abb. 4.47 gezeigt. Ein ähnlicher Verlauf kann beobachtet werden, wobei als Hauptunterschied die Brenngeschwindigkeiten im Alumina-Schwamm aufgrund der geringeren Wärmeleitfähigkeit und des kleineren Dispersionseffekts kleiner sind (siehe Tab. 4.11).

4.2.3.3 Sensitivität der Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner auf Änderung des charakteristischen Längenmaßes für Strömungsdispersion

Zur Modellierung der Strömungsdispersion wurde im vorliegenden numerischen Modell die empirische Beziehung für Kugelschüttungen (Gl. 2.29) verwendet. Für die Anwendung dieser Beziehung auf keramische Schwämme ist es erforderlich, das für Dispersion charakteristische Längenmaß zu bestimmen. In Kapitel 4.2.1.2 wurde das hier verwendete numerische Verfahren zur Bestimmung der Dispersionskoeffizienten in festen Schwämmen beschrieben.

Die Strömungsdispersion ist abhängig vom lokalen Geschwindigkeitsfeld in einer porösen Struktur, und dieses hängt wiederum mit der Strukturgeometrie zusammen. Deshalb kommt eine Abweichung der Dispersionskoeffizienten unterschiedlicher Proben vom Schwamm gleicher Nenncharakteristiken (PPI-Zahl, Porosität) aufgrund der lokalen geometrischen Unregelmäßigkeiten zustande.

Zur Untersuchung des Einfluss des für die Strömungsdispersion charakteristischen Längenmaßes auf die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner wurden beispielhaft numerische Simulationen für eine Luftzahl von $\lambda=1,55$ und ein Bereich von $d_{pe}=0 - 0,5$ mm durchgeführt. Dabei wurden die Schwammparameter für den 10 PPI SiSiC-Schwamm (Tab. 4.7) verwendet. Das Ergebnis ist die in Abb. 4.48 dargestellte Abhängigkeit der Brenngeschwindigkeit S_{PIM} vom charakteristischen Längenmaß für die Strömungsdispersion.

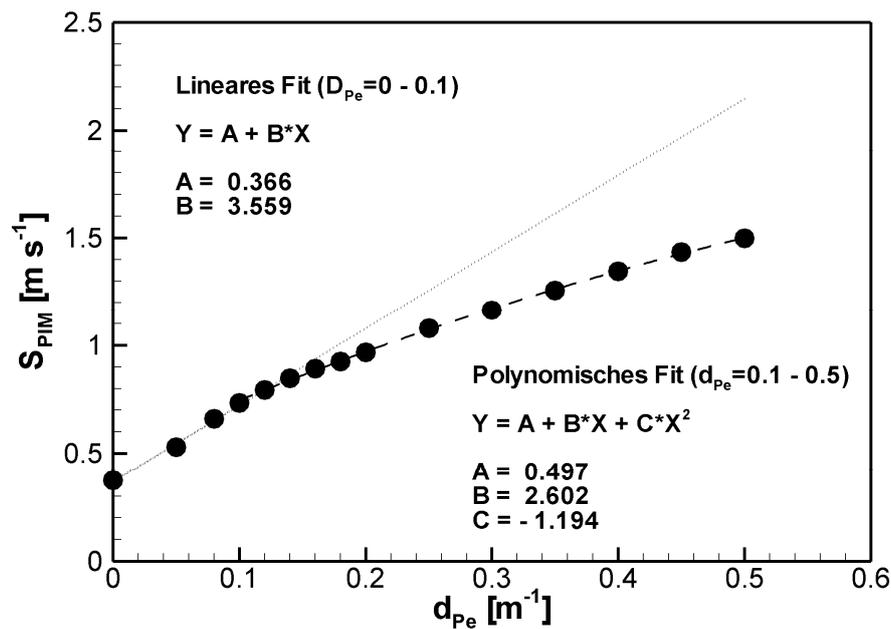


Abbildung 4.48: Abhängigkeit der berechneten Brenngeschwindigkeit vom charakteristischen Längenmaß für Strömungsdispersion ($\lambda=1,55$; $T_{vw}=25^\circ C$)

In Abb. 4.48 lassen sich zwei Bereiche unterscheiden. Im Bereich kleiner Längenmaße (in etwa $d_{pe}=0 - 0,1$) in dem der Betrag der Dispersion gering ist, ist der funktionale Zusammenhang sehr ausgeprägt und kann mit einer linearen Anpassung (siehe Abb. 4.48) wiedergegeben werden. In diesem Bereich beeinflusst der Betrag der thermischen bzw. Stoffdiffusivität den Verbrennungsvorgang im Schwamm sehr stark, so dass bereits eine kleine Erhöhung des charakteristischen Längenmaßes zu einer relativ großen Zunahme der Brenngeschwindigkeit führt. Im Bereich $d_{pe}=0,1 - 0,5$ wird der Betrag der Dispersion ausreichend groß, so dass die Abhängigkeit der Brenngeschwindigkeit vom charakteristischen Längenmaß für die Dispersion schwächer wird und mit einer polynomischen Anpassung beschrieben werden kann (siehe Abb. 4.48).

Dieser Befund deutet auf die Analogie zwischen einer turbulenten Flamme und einer Flamme in Porenbrenner hin. In [129] wird gezeigt, dass die turbulente Brenngeschwindigkeit (S_t) im Falle der schwachen Turbulenz ($Da_t \gg 1$) linear mit der turbulenten Geschwindigkeitsschwankung (u') steigt. Jedoch kann im Falle der hohen Turbulenz ($Da_t \ll 1$) die Abhängigkeit der S_t von u' mit einer Wurzelfunktion beschrieben werden. Also es kann eine Analogie zwischen $u'L_t$ bei den turbulenten Flammen und D_{im}^* bei einer Flamme in Porenbrenner festgestellt werden. In [182] wurde die Verbrennung in PIM als turbulente Verbrennung anhand von Damköhler-Theorie modelliert. In der vorliegenden Arbeit wurde die „Turbulenz“ im Schwamm als Dispersion in das eindimensionale numerische Modell miteinbezogen aber die Phänomenologie ist gleich wie in [182]. Allerdings wurden

die Dispersionskoeffizienten in der vorliegenden Arbeit aus den realen dreidimensionalen Strukturen erfasst und nicht wie in [182] durch die empirische Beziehungen modelliert. Dadurch kann die in dieser Arbeit gewonnene deutlich bessere Übereinstimmung zwischen den gemessenen und gerechneten Brenngeschwindigkeiten begründet werden.

4.2.4 Flammenstabilisierung in diversen Brennerkonfigurationen: numerische Untersuchung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit soll ein eindimensionales numerisches Modell der Verbrennung in festen Schwämmen entwickelt werden, das in der Lage ist, die zugrunde liegenden Phänomene dieses Vorganges in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Daten zu beschreiben. Ein solches Modell wurde in Kapitel 4.2.1 vorgestellt und die vorherrschenden Transportmechanismen sowie deren relative Wichtigkeit für die Flammenstabilität im Porenbrenner wurden in Kapitel 4.2.3 analysiert. Wie schon in der Diskussion von Abb. 4.42 und 4.43 festgestellt wurde, ist mit diesem Modell eine sehr gute Übereinstimmung zwischen numerischen Ergebnissen und den experimentellen Daten für den 10 PPI SiSiC-Brenner (K04-Brenner in Tab. 3.3) bezüglich des Temperaturverlaufs und der Flammenstabilität möglich. Um den möglichen Anwendungsbereich des numerischen Modells zu bestimmen, wurden die numerische Simulationen für alle experimentell untersuchten Brennerkonfigurationen (bezüglich der Verbrennungszone) und für unterschiedliche Luftvorwärmtemperaturen durchgeführt. Die dabei ermittelten Ergebnisse werden in den folgenden Abschnitten näher diskutiert.

4.2.4.1 Verbrennung in einem 10 PPI SiSiC-Schwamm (K04-Konfiguration)

Da der 10 PPI SiSiC-Schwamm als Referenzfall für die numerischen Untersuchungen der relativen Wichtigkeit unterschiedlicher Transportvorgänge für die Flammenstabilisierung verwendet wurde, wurden die gewonnenen Stabilitätsdiagramme für unterschiedliche Luftvorwärmtemperaturen schon in Kapitel 4.2.3 mit experimentellen Daten verglichen und ausführlich diskutiert. Deshalb werden die Stabilitätsdiagramme hier nur der Vollständigkeit halber in Abb. 4.49 bzw. 4.50 für die Vorwärmtemperaturen der Verbrennungsluft von $T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$ bzw. $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$ dargestellt. Die für die numerischen Simulationen verwendeten Schwamm-Parameter wurden bereits in Tab. 4.7 gegeben.

An dieser Stelle kann die hervorragende Übereinstimmung zwischen den numerischen und experimentellen Ergebnissen für die Verbrennung bei $T_{vW}=25^{\circ}\text{C}$ hervorgehoben werden. Die geringfügige Abweichung des numerisch ermittelten Stabilitätsdiagrammes bei $T_{vW}=350^{\circ}\text{C}$ kann Unsicherheiten bei der Wahl der verwendeten Schwammparameter zugeschrieben werden. Da der sich einstellende Temperaturbereich im Porenbrenner für beide untersuchten Luftvorwärmtemperaturen annähernd gleich blieb, kann die Temperaturabhängigkeit einiger Schwammparameter (Extinktionskoeffizient β und Wärmeleitfähigkeit des Schwammes λ_{PIM}) als Grund für die beobachtete Abweichung ausgeschlossen werden. Jedoch sind die Bereiche der Strömungsgeschwindigkeit in den zwei untersuchten Fällen ($T_{vW}=25^{\circ}\text{C}$ und 350°C) stark unterschiedlich. Dementsprechend sind die Abweichungen von den gemessenen Daten, die bei einer hohen Luftvorwärmtemperatur von 350°C , nicht jedoch bei niedriger T_{vW} von 25°C berechnet wurden, auf die geschwindigkeitsabhängigen Parameter des Modells, wie die Dispersionskoeffizienten (D_{im}^* und a_g^*) und den Wärmeübergangskoeffizienten α zurückzuführen.

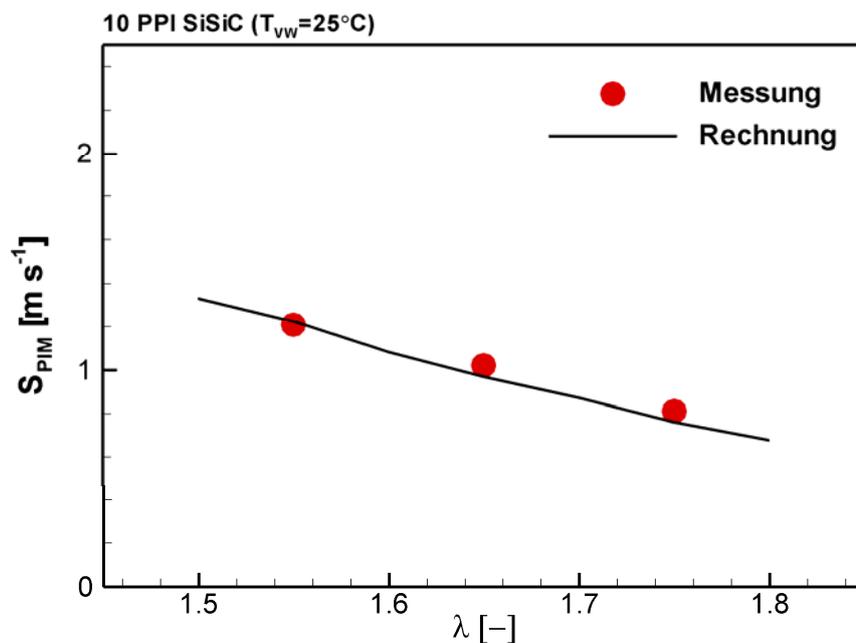


Abbildung 4.49: Flammenstabilitätsdiagramm für den 10 PPI SiSiC-Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vW}=25^{\circ}\text{C}$; Vergleich Messung und Rechnung

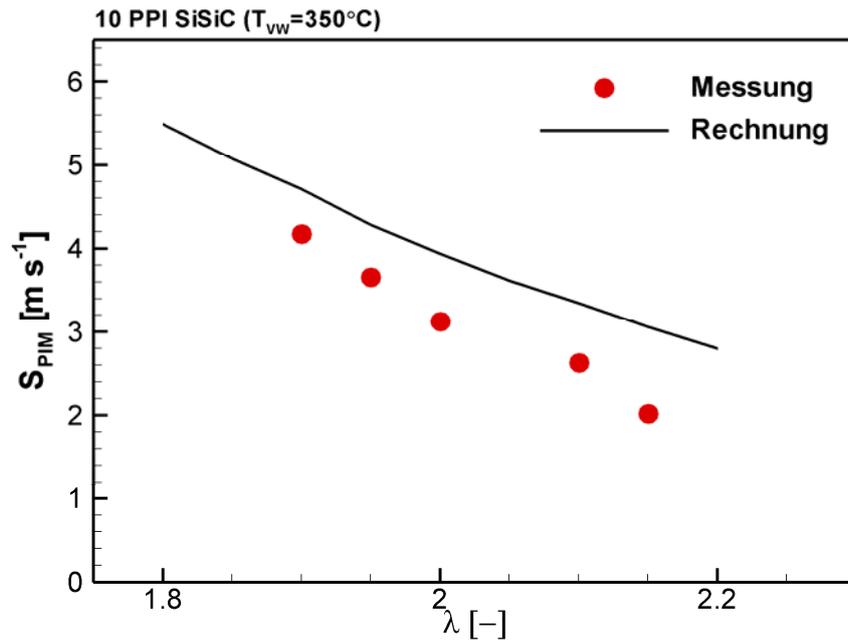


Abbildung 4.50: Flammenstabilitätsdiagramm für den 10 PPI SiSiC-Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw}=350^{\circ}\text{C}$; Vergleich Messung und Rechnung

4.2.4.2 Verbrennung in einem 20 PPI SiSiC-Schwamm (K05-Konfiguration)

Für die eindimensionale numerische Simulation der Verbrennung in einem 20 PPI SiSiC-Schwamm (K05 Brennerkonfiguration in Tab. 3.3) wurden die in Tab. 4.10 gegebenen Schwammparameter verwendet. Die in Tab. 4.10 gegebenen Kennwerte zeigen, dass eine Erhöhung der Porendichte (von 10 auf 20 PPI) eine höhere spezifische Oberfläche, aber auch einen höheren Extinktionskoeffizienten zur Folge hat. Aufgrund der kleineren mittleren Porengröße sinkt auch das charakteristische Längenmaß für die Dispersion. Diese Absenkung ist jedoch sehr gering im Vergleich zur Abnahme des mittleren geometrischen Porendurchmessers (d_{Nu}), d.h. im Falle von SiSiC-Schwämmen bleibt der Betrag der Strömungsdispersion vergleichsweise hoch trotz der Verkleinerung der Porenabmessung. Dies ist auf die Mikrotopologie der SiSiC-Schwämme und ihren Einfluss auf das Strömungsfeld im Schwamm zurückzuführen.

Die numerischen Untersuchungen der Verbrennung im 20 PPI SiSiC-Schwamm wurden für Luftvorwärmtemperaturen von $T_{vw}=25^{\circ}\text{C}$ bzw. $T_{vw}=350^{\circ}\text{C}$ durchgeführt. Als Beispiel für die berechneten Verläufe sind die Gas- und Schwammtemperatur, die CH_3 -Konzentration und der Verlauf der Wärmefreisetzung (Gl. 4.27) für die Luftzahlen $\lambda=1,65$ bzw. $\lambda=2,0$ in Abb. 4.51 dargestellt. Das in

Kapitel 4.2.3 schon diskutierte Verhalten ist auch in Abb. 4.51 zu beobachten. im Falle der erhöhten Luftvorwärmtemperatur ist auch hier ist eine stärkere Verdickung der Flammenfront bzw. stärkere Abflachung des Gastemperaturprofils aufgrund des erhöhten Stoff- und Wärmetransports zu sehen, da hier maßgeblich höhere Strömungsgeschwindigkeiten erreicht wurden und dadurch die Strömungsdispersion stieg.

Tabelle 4.10: Charakteristische Parameter des untersuchten 20 PPI SiSiC-Schwammes

Parameter	Einheit	Wert	Quelle
ε	%	87	Große et al. [164]
S_V	m^{-1}	685	Große et al. [164]
d_{Pe}	mm	3,048	Habisreuther et al. [89]
d_{Nu}	mm	1,6	Große et al. [164]
λ_s	$W m^{-2} K^{-1}$	40	Schulle [12]
β	m^{-1}	244	Hsu und Howell [90]
C	-	0,139	Younis und Viskanta [112]
m	-	0,92	Younis und Viskanta [112]

Der Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Flammenstabilitätsdiagrammen für die Vorwärmtemperaturen $T_{VW}=25^\circ C$ bzw. $T_{VW}=350^\circ C$ ist in Abb. 4.52 bzw. Abb. 4.53 gezeigt. Eine ausgezeichnete Übereinstimmung ist in beiden untersuchten Fällen zu beobachten.

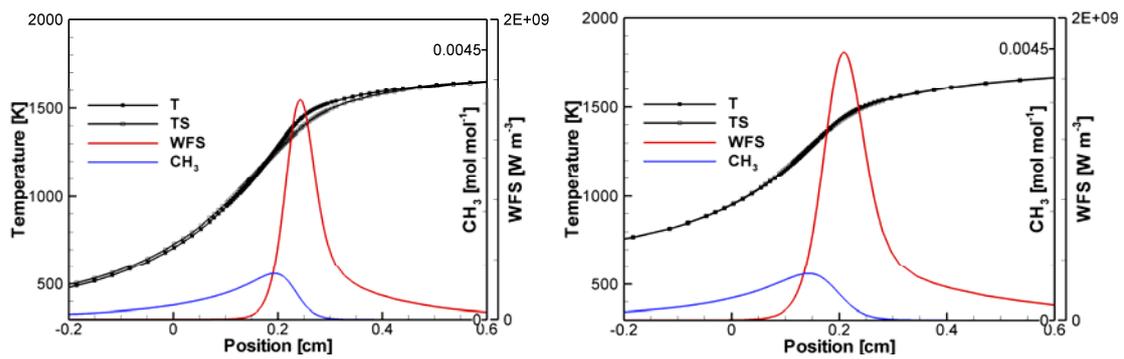


Abbildung 4.51: Verläufe der Gas- und Schwamm-Temperatur, der CH_3 -Konzentration und der Wärmefreisetzung für $\lambda = 1,65$ und $T_{\text{vw}}=25^\circ\text{C}$ (links) und $\lambda = 2,0$ und $T_{\text{vw}}=350^\circ\text{C}$ (rechts)

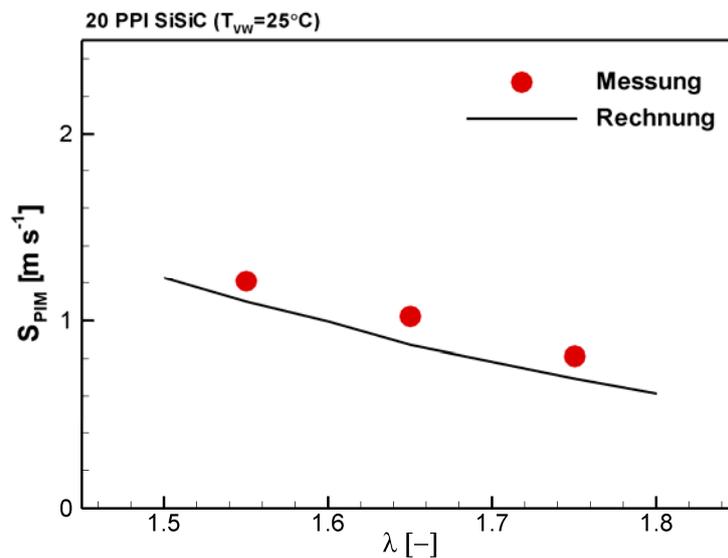


Abbildung 4.52: Flammenstabilitätsdiagramm für den 20 PPI SiSiC-Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{\text{vw}}=350^\circ\text{C}$; Vergleich Messung und Rechnung

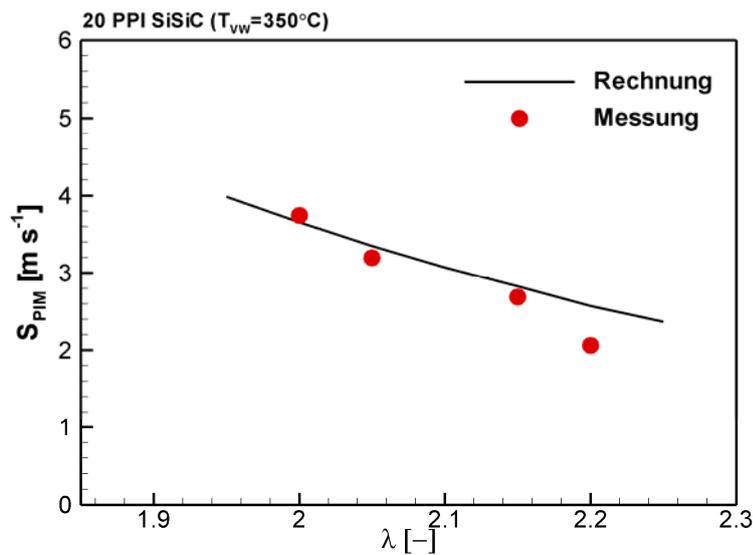


Abbildung 4.53: Flammenstabilitätsdiagramm für den 20 PPI SiSiC-Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw}=350^{\circ}C$; Vergleich Messung und Rechnung

4.2.4.3 Verbrennung in einem 10 PPI Al_2O_3 -Schwamm (K01-Konfiguration)

Die Verbrennung in einem 10 PPI Al_2O_3 -Schwamm (K01-Brennerkonfiguration in Tab. 3.1) wurde simuliert durch das Einsetzen der in Tab. 4.11 aufgelisteten thermophysikalischen Parameter in das in Kapitel 4.2.1 vorgestellte eindimensionale numerische Modell. Das wichtige Merkmal der Alumina-Schwämme ist die wesentlich geringere Feststoffwärmeleitfähigkeit relativ zum Siliziumkarbid. Darüber hinaus zeichnen sich diese Schwämme im Vergleich mit SiSiC-Schwämmen gleicher Nennporendichte durch eine höhere spezifische Oberfläche und somit durch eine höhere Austauschoberfläche für die Wärmeübertragung aus, aber auch bedingt durch die kleinere mittlere Porengröße weisen sie einen höheren Extinktionskoeffizienten und damit auch schlechteren Strahlungstransport und eine geringere Strömungsdispersion auf.

Beispiele der berechneten Temperatur-, CH_3 -Konzentrations- und Wärmefreisetzungsverläufe für $\lambda=1,65$ und $T_{vw}=25^{\circ}C$ bzw. für $\lambda=2,0$ und $T_{vw}=350^{\circ}C$ sind in Abb. 4.54 gezeigt. Der geringere Dispersionseffekt relativ zum entsprechenden Schwamm aus SiSiC ist in Abb. 4.54 besonderes für die bei geringerer Luftvorwärmtemperatur ($T_{vw}=25^{\circ}C$) ermittelten Temperaturverläufe deutlich zu sehen. Das Gastemperaturprofil ist hier steiler relativ zu dem im SiSiC-Brenner, bedingt durch den geringeren Wärmetransport im Gas mittels Strömungsdispersion. Deshalb ist der Unterschied zwischen Gas- und

Schwammtemperatur viel ausgeprägter. Wieder ist mit Erhöhung der Luftvorwärmtemperatur und damit auch der Strömungsgeschwindigkeit eine stärkere Auswirkung der hydrodynamischen Dispersion zu beobachten.

Tabelle 4.11: Charakteristische Parameter des untersuchten 10 PPI Al₂O₃-Schwammes

Parameter	Einheit	Wert	Quelle
ε	%	85	Große et al. [164]
S_V	m ⁻¹	629	Große et al. [164]
d_{pe}	mm	2,0	Habisreuther et al. [89]
d_{Nu}	mm	1,95	Große et al. [164]
λ_s	Wm ⁻² K ⁻¹	5	Schulle [12]
β	m ⁻¹	210	Hsu und Howell [90]
C	-	0,146	Younis und Viskanta [112]
m	-	0,96	Younis und Viskanta [112]

Die berechneten Flammenstabilitätsdiagramme für die Luftvorwärmtemperatur von $T_{VW}=25^\circ\text{C}$ bzw. $T_{VW}=350^\circ\text{C}$ sind in Abb. 4.55 bzw. 4.56 mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Eine gute Übereinstimmung bezüglich des Wertebereichs zwischen der numerischen Voraussage und den experimentell detektierten Brenngeschwindigkeiten ist für $T_{VW}=25^\circ\text{C}$ erreicht worden. Jedoch ist ein systematischer Fehler in der Wiedergabe der Steigung der Stabilitätskurve zu sehen. Diese Diskrepanz tritt noch deutlicher bei der Simulationen mit der Temperatur der Verbrennungsluft von $T_{VW}=350^\circ\text{C}$ auf. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die verwendeten Literatur-Modelle zur Beschreibung der thermophysikalischen Eigenschaften der Alumina-Schwämme es nicht erlauben, mit ausreichender Genauigkeit die Transportprozesse in den hier experimentell untersuchten Alumina-Strukturen wieder zu geben.

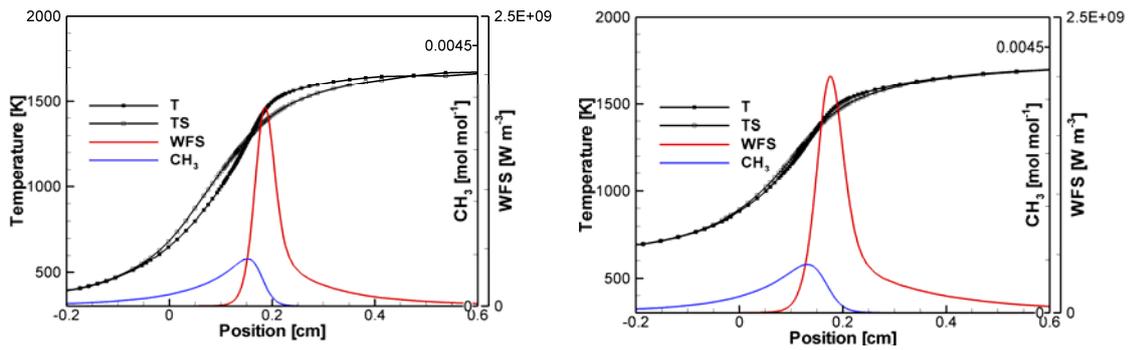


Abbildung 4.54: Verläufe der Gas- und Schwamm-Temperatur, der CH₃-Konzentration und der Wärmefreisetzung für $\lambda = 1,65$ und $T_{vw} = 25^\circ\text{C}$ (links) und $\lambda = 2,0$ und $T_{vw} = 350^\circ\text{C}$ (rechts)

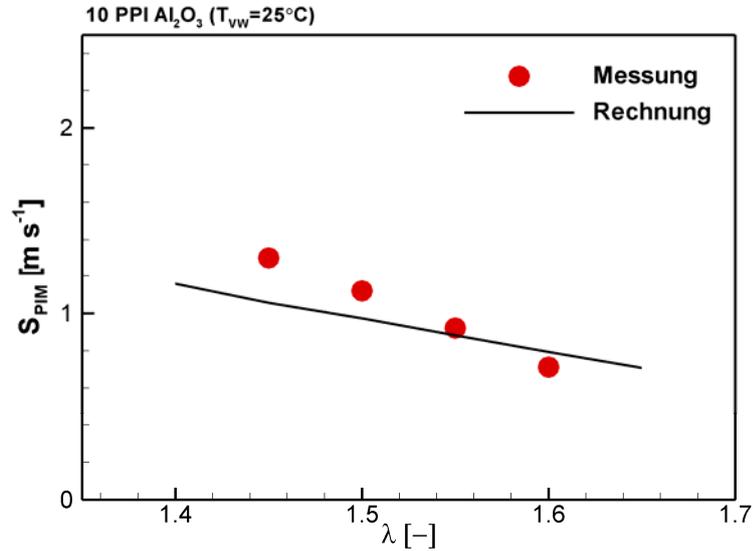


Abbildung 4.55: Flammenstabilitätsdiagramm für den 10 PPI Al₂O₃-Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw} = 25^\circ\text{C}$; Vergleich Messung und Rechnung

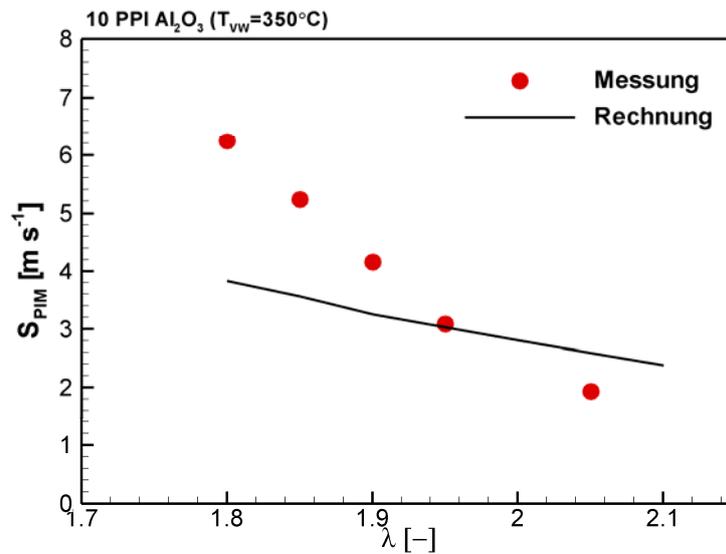


Abbildung 4.56: Flammenstabilitätsdiagramm für den 10 PPI Al_2O_3 -Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{VW}=350^\circ C$; Vergleich Messung und Rechnung

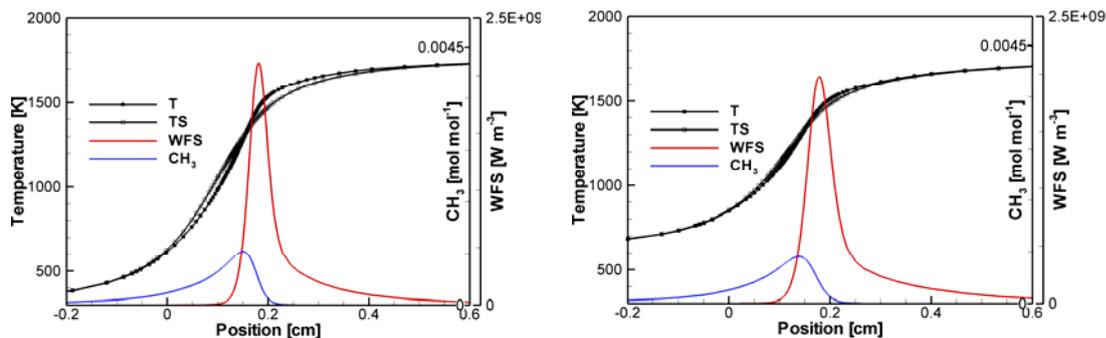
4.2.4.4 Verbrennung in einem 20 PPI Al_2O_3 -Schwamm (K02-Konfiguration)

Der untersuchte 20 PPI Al_2O_3 -Schwamm wurde mit den in Tab. 4.12 gegebenen Parametern modelliert. Dieser Schwamm weist eine höhere spezifische Oberfläche und demzufolge einen besseren Wärmeübergang im Vergleich zum 10 PPI-Schwamm aus dem gleichen Werkstoff auf. Wie erwartet, steigt in diesem Fall der Extinktionskoeffizient, d.h. der Wärmetransport mittels Strahlung sinkt entsprechend. Der Effekt der hydrodynamischen Dispersion wird, bedingt durch ein kleineres charakteristisches Längenmaß, kleiner als derjenige des Schwammes mit größeren Poren. Diese beiden Änderungen führen zur Minderung der Flammenstabilisierung relativ zu dem 10 PPI Alumina-Schwamm.

Die typischen Verläufe der Temperatur, CH_3 -Konzentration und normierten Wärmefreisetzung sind für die Beispiele mit $\lambda = 1,55$ und $T_{VW}=25^\circ C$ bzw. $\lambda = 2,0$ und $T_{VW}=350^\circ C$ in Abb. 4.57 dargestellt.

Tabelle 4.12: Charakteristische Parameter des untersuchten 20 PPI Al₂O₃-Schwammes

Parameter	Einheit	Wert	Quelle
ε	%	85	Große et al. [164]
S_V	m ⁻¹	1180	Große et al. [164]
d_{Pe}	mm	1,8	Habisreuther et al. [89]
d_{Nu}	mm	1,2	Große et al. [164]
λ_s	Wm ⁻² K ⁻¹	6	Schulle [12]
β	m ⁻¹	300	Hsu und Howell [90]
C	-	0,139	Younis und Viskanta [112]
m	-	0,92	Younis und Viskanta [112]

**Abbildung 4.57:** Verläufe der Gas- und Schwamm-Temperatur, der CH₃-Konzentration und der Wärmefreisetzung für $\lambda = 1,55$ und $T_{VW}=25^\circ\text{C}$ (links) und $\lambda = 2,0$ und $T_{VW}=350^\circ\text{C}$ (rechts)

Das berechnete Flammenstabilitätsdiagramm für eine Vorwärmtemperatur der Verbrennungsluft von $T_{VW}=25^\circ\text{C}$ ist in Abb. 4.58 zusammen mit den entsprechenden Messdaten dargestellt, wobei eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der numerischen Voraussage und der gemessenen Brenngeschwindigkeit zu beobachten ist. Jedoch zeigt die berechnete Stabilitätskurve bei den Untersuchungen mit der

erhöhten Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw}=350^{\circ}\text{C}$ (Abb. 4.59) auch hier eine Diskrepanz bezüglich der Steigung der experimentell ermittelten Brenngeschwindigkeit–Luftzahl-Abhängigkeit.

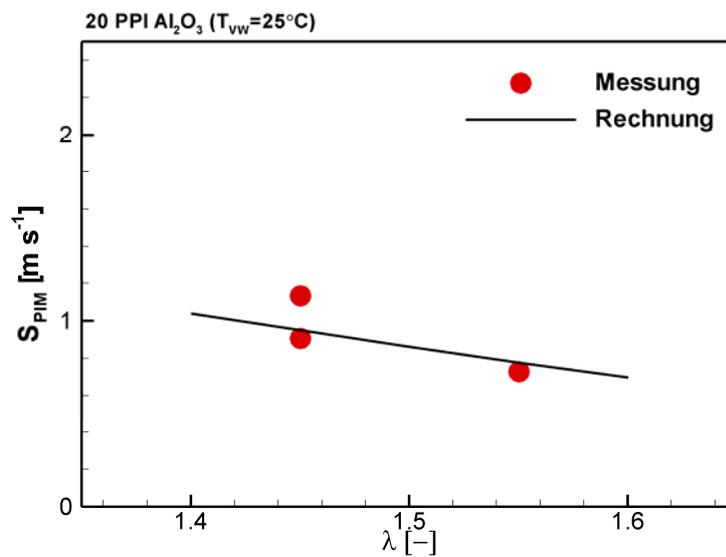


Abbildung 4.58: Flammenstabilitätsdiagramm für den 20 PPI Al_2O_3 -Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw}=25^{\circ}\text{C}$; Vergleich Messung und Rechnung

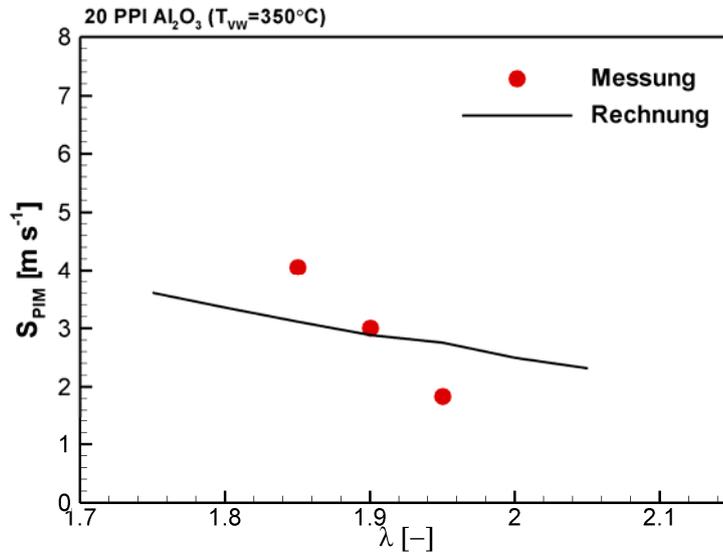


Abbildung 4.59: Flammenstabilitätsdiagramm für den 20 PPI Al_2O_3 -Schwamm und eine Luftvorwärmtemperatur von $T_{vw}=350^\circ C$; Vergleich Messung und Rechnung

4.2.4.5 Stabilitätsmodell

In der Literatur können verschiedene Modellansätze zur Beschreibung der Stabilität turbulenter Flammen gefunden werden, welche als ein Anhaltspunkt zur Auslegung und Dimensionierung der Brenner unterschiedlicher Anwendungen verwendet werden können. Es existiert ein halbempirisches, auf Pe-Zahl basierendes Stabilitätsmodell, welches mit Erfolg auf staukörperstabilisierte und drallbehaftete Flammen angewandt wurde [124, 176, 180, 181]. Aus den einfachen physikalischen Betrachtungen lässt sich für die turbulenten Flammen folgende Beziehung herleiten (siehe [176]):

$$\frac{U_{char} L_{char}}{a} = const * \left(\frac{S_l L_{char}}{a} \right)^2 \quad (4.33)$$

also

$$Pe_U \propto Pe_{lam}^2$$

Die charakteristische Geschwindigkeit U_{char} und das charakteristische Längenmaß L_{char} werden anhand der für die jeweilige Brennerkonfiguration und den

zugehörigen Flammenstabilisierungsmechanismus zugrunde liegenden Phänomene bestimmt.

Zur Anwendung dieses Stabilitätsmodells auf die Verbrennung in PIM wird hier als charakteristische Geschwindigkeit die Leerrohrgeschwindigkeit des Frischgasgemisches auf der Flammenstabilitätsgrenze, welche in dieser Arbeit als Brenngeschwindigkeit in PIM definiert wurde, gewählt (siehe Kapitel 4.1.3.3). Die für die Flammenstabilisierung in einem Porenbrenner essenzielle Schwammgeometrie wird im Stabilitätsmodell durch das Einsetzen der Porenabmessung als charakteristisches Längenmaß berücksichtigt. Somit kann das Modell für die Flammenstabilisierung in einem keramischen Schwamm analog ausgedrückt werden:

$$\frac{S_{PIM} d_{pore}}{a} = const \cdot \left(\frac{S_l d_{pore}}{a} \right)^2 \quad (4.34)$$

also

$$Pe_{PIM} \propto Pe^2_{S_l}$$

Die in der vorliegenden Arbeit aus den numerischen Simulationen ermittelten Daten bezüglich der Flammenstabilität in allen untersuchten Brennerkonfigurationen wurden anhand des vorgeschlagenen Stabilitätsmodells (Gl. 4.34) in Abb. 4.60 zusammengefasst. Abb. 4.60 zeigt, dass die Pe-Zahl-Beziehung die ermittelten Stabilitätsdaten für vier unterschiedliche Brennerkonfigurationen sehr gut korreliert. Es wird ersichtlich, dass die berechneten Pe_{PIM} -Zahlen an der Stabilitätsgrenze für zwei Schwämme unterschiedlicher Porendichte und für alle untersuchten Betriebsbedingungen (Luftzahlen und Luftvorwärmtemperaturen) für einen Werkstoff auf einer gleichen Kurve liegen. Darüber hinaus scheint es aus Abb. 4.60, dass die Stabilitätsdaten für die zwei untersuchten Werkstoffe (Al_2O_3 und $SiSiC$) mit zwei, zwar ähnlichen, aber sich dennoch unterscheidenden Korrelationen beschrieben werden können. Der mit dem Stabilitätsmodell berücksichtigte Porendurchmesser bezieht zwar eine geometrische Kenngröße mit ein, jedoch ist er darüber hinaus nicht ausreichend die komplexe und randome Topologie der Struktur zu beschreiben. Die Schwammtopologie wurde aber in der numerischen Bestimmung der Dispersionskoeffizienten durch die Verwendung der dreidimensionalen Strukturdaten (CT, MRI) zur Generierung des Rechengitters berücksichtigt. Deshalb wurden in der vorliegenden Arbeit zwei Pe-Zahl-Korrelationen für den jeweiligen untersuchten Werkstoff bestimmt; diese sind in Abb. 4.61 dargestellt. Abb. 4.61 zeigt, dass die Steigung der beiden Kurven fast identisch ist. Dies deutet darauf hin, dass der Einfluss der Dispersion durch das Model korrekt wiedergegeben wird, da der Temperaturbereich für beide untersuchte Werkstoffe ähnlich ist. Darüber hinaus

kann geschlossen werden, dass der Unterschied in der Verschiebung dieser zwei Stabilitätskurven aus der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeit, λ_s , stammt.

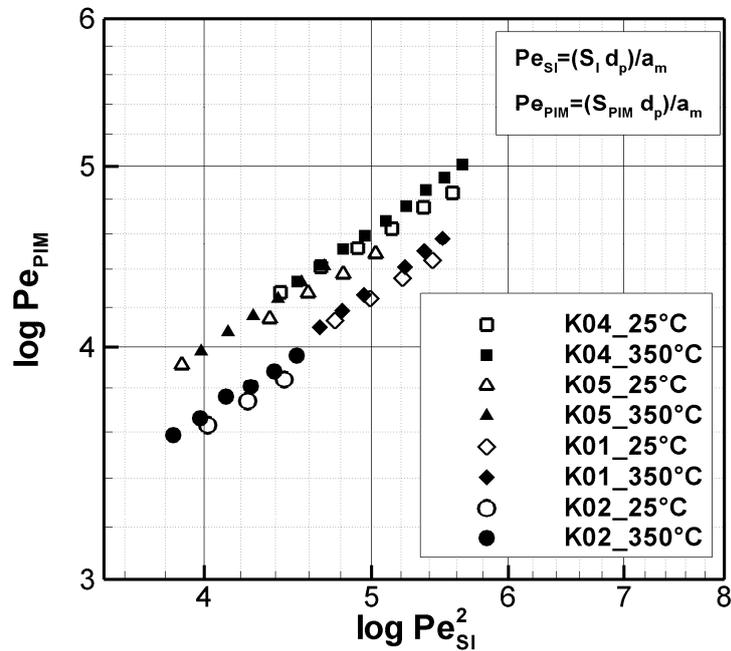


Abbildung 4.60: Pe-Zahlen an der Stabilitätsgrenze nach Gl. 4.34 für unterschiedliche Brennerkonfigurationen und Betriebsbedingungen (Luftzahl, Luftvorwärmtemperatur)

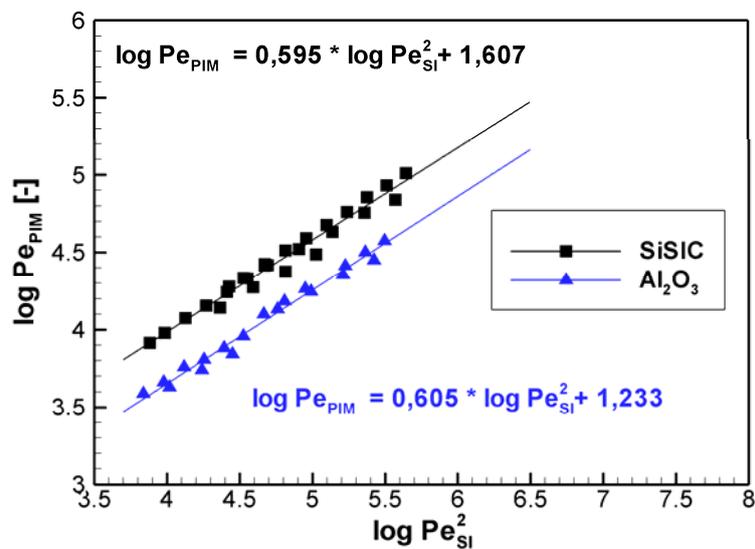


Abbildung 4.61: Stabilitätsmodell in Form einer Pe-Zahl-Korrelation für zwei unterschiedlichen Schwammtypen: Al_2O_3 und SiSiC

Aus den in Abb. 4.61 angegebenen Korrelationen lässt sich folgender Zusammenhang herleiten:

$$\frac{S_{PIM}}{S_l} = const_2 \cdot \left(\frac{S_{PIM} d_{pore}}{a} \right)^{0,167} \quad (4.35)$$

Gemäß der in Kapitel 4.1.3.3 eingeführten Definition der Brenngeschwindigkeit in PIM wird Gl. 4.35 zu:

$$\frac{S_{PIM}}{S_l} = const_2 \cdot (Re_{PIM})^{0,167} \quad (4.36)$$

wobei

$$Re_{PIM} = \frac{U_0 \cdot d_{pore}}{a}$$

Gleichung 4.36 ist mit der entsprechenden Korrelation für die turbulenten Flammen vergleichbar:

$$\frac{S_{turb}}{S_l} = const_2 \cdot (Re_{turb})^{0,5} \quad (4.37)$$

wobei

$$Re_{turb} = \frac{u' \cdot L_t}{a}$$

Hierbei bezeichnet u' bzw. L_t die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit bzw. das turbulente Längenmaß. Bei Verbrennung in festen Schwämmen wurde eine Abweichung von der für turbulenten Flammen theoretisch hergeleiteten Wurzel-Abhängigkeit (Gl. 4.37) detektiert (4.36). Der Hauptgrund für diese Abweichung liegt in Flammenstabilisierungsmechanismus bei Verbrennung in PIM, wo neben dem intensivierten Mischen analog zu turbulenten Flammen auch eine Wärmerezirkulation durch die feste Phase stattfindet.

Das in dieser Arbeit vorgeschlagene Stabilitätsmodell stellt ein vereinfachtes Kriterium dar, welches eine Vorhersage der Stabilitätsgrenzen für das hier untersuchte Verbrennungssystem anhand seiner globalen Größen ermöglicht. Hierbei kann die Verbrennung im porösen inerten Medium als turbulente Verbrennung mit einer einheitlichen Temperatur für Feststoff und Gas betrachtet werden. Die Rechnungen zeigen, dass die Gas- und Feststofftemperatur sehr ähnlich sind. Deshalb kann die vorgeschlagene Korrelation angewandt werden. Jedoch sind die Konstanten (siehe Abb. 4.53) von der jeweiligen Geometrie abhängig und müssen mittels aufwändiger experimenteller Untersuchungen bestimmt werden, bevor dieses

Stabilitätsmodell angewendet werden kann. Darüber hinaus ändert sich bei unterschiedlichen Herstellern die für die Verbrennung in PIM entscheidende Schwammtopologie bei den Schwämmen gleicher Nenncharakteristiken sehr stark. Sogar die gleichen Schwämme eines Herstellers weisen geometrische Abweichungen, abhängig von ihren äußeren Abmessungen, bedingt durch die Beschränkungen des Herstellungsprozesses auf. Diese für die Schwammstrukturen typischen Ungleichmäßigkeiten vermindern maßgeblich die Vorhersagbarkeit des vorgeschlagenen Stabilitätsmodells, sogar bei der Skalierung des schon experimentell charakterisierten Verbrennungssystems.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit liefert einen Beitrag zur grundlegenden Untersuchung einer Flammenstabilisierung, welche durch eine in einem porösen, inerten, keramischen Medium (Schwamm) stattfindende Vormischverbrennung gewährleistet werden soll. Damit soll das hohe Potenzial der mageren Vormischflammen zur Minderung der Schadstoffemissionen zunutze gemacht werden mit gleichzeitiger Verhinderung der mit dieser Art der Verbrennungsausführung zusammenhängenden technischen Schwierigkeiten wie Flammenrückschlag, thermoakustischen Instabilitäten und Selbstzündung. Obwohl dieses Konzept zur Verbesserung der Zuverlässigkeit unterschiedlicher, umweltfreundlicher Verbrennungssysteme dienen kann, steht im Fokus dieser Arbeit seine potenzielle Anwendung in Gasturbinen mit dem Ziel der Minderung der Schadstoffemissionen.

Der stabile Betrieb im ganzen Lastbereich eines Brenners wird in modernen Gasturbinen durch einen mit einer diffusiven Flamme arbeitenden Pilotbrenner gewährleistet. Dieser Pilotbrenner stellt zurzeit die Hauptquelle der Stickoxid-Emissionen in Gasturbinen dar. Das Verzichten auf den im diffusiven Modus arbeitenden Pilotbrenner, der Hybrid-Brenner, in Gasturbinen mit gleichzeitiger Vermeidung der Nachteile der katalytischen Verbrennung setzt die Realisierung einer hoch stabilen Vormischverbrennung voraus. Daher ist die Idee, die in dieser Arbeit verfolgt wird, das Erreichen der hohen Flammenstabilität in einem Pilotbrenner durch das Einsetzen des Porenbrennerkonzepts.

In einem Porenbrenner findet die Verbrennung nicht mehr in der offenen Flamme statt, sondern wird innerhalb eines dreidimensionalen Volumens einer porösen Hochtemperaturkeramik stabilisiert. Das Flammenstabilisierungsprinzip in einem Porenbrenner basiert auf dem erhöhten Wärmetransport, welcher durch die um Größenordnung bessere Wärmetransporteigenschaften der festen Phase, relativ zum Gas, gewährleistet wird. Das Stabilisierungsprinzip in einem mit einer Schwammstruktur bestückten Porenbrenner kann mit folgenden Überlegungen beschrieben werden. In der Reaktionszone wird die Verbrennungswärme freigesetzt mit dem Ergebnis, dass die Gastemperatur höher ist als die des Schwammes. Die vorliegende Temperaturdifferenz resultiert aufgrund der großen inneren Oberfläche des Porenkörpers in einem sehr effektiven Wärmeübergang vom Gas zum Schwamm. Somit steigt die Temperatur des Schwammes in der Reaktionszone höher als in der Vorwärmzone. Aufgrund des existierenden Temperaturgradienten erfolgt ein intensiver Wärmestrom innerhalb der festen Phase aus dem Bereich der

Reaktionszone entgegen der Strömungsrichtung mittels Strahlung und Wärmeleitung. Dieser Wärmestrom ergibt wiederum eine höhere Schwammtemperatur in der Vorwärmzone im Vergleich zur Gastemperatur und die Wärme wird vom Schwamm zum Gas übertragen. Diese stromauf wirkende innere Wärmereizirkulation bewirkt eine Vorwärmung des Frischgasgemisches und resultiert in einer lokalen Erhöhung der Verbrennungstemperatur über den Gleichgewichtswert hinaus, was zu einer Erhöhung der Flammengeschwindigkeit und daher zu einer Erweiterung des Stabilitätsbereiches im Vergleich zur laminaren Flamme führt. Hierbei entsteht kein Nettowärmestrom, sondern alle diese Vorgänge tragen zum *erhöhten internen Gesamtwärmetransport* bei. Die Schadstoffemissionen hängen vom Temperaturfeld und der Verweilzeit der Fluidelemente in der Reaktionszone ab. Die sehr schnelle Wärmeabfuhr aus der Reaktionszone und deren Nachlauf bewirken eine geringere NO-Bildungsrate, ohne den CO Abbau entscheidend zu verschlechtern.

Entsprechend dem beschriebenen Stabilisierungsprinzip stellen die Wärmetransporteigenschaften der porösen Matrix einen Schlüsselpunkt für die Flammenstabilisierung dar und sie sind durch die Schwammgeometrie und Werkstoffeigenschaften bestimmt. Für die untersuchte Anwendung als Pilotbrenner in Gasturbinen wurden in der vorliegenden Arbeit die keramischen Schwammstrukturen gewählt. Diese porösen Medien weisen im Gegensatz zu Schüttungen eine hohe Porosität auf, wodurch der gaseitige Druckverlust klein und die Aufheiz- und Abkühlzeiten kurz gehalten werden.

Aus der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Literaturrecherche der experimentellen und numerischen Studien der Verbrennung in Schwammstrukturen lässt sich folgern, dass sowohl das Strömungsfeld, welches sich aus der Strukturgeometrie ergibt, als auch die Wärmetransporteigenschaften des Porenkörpers eine entscheidende Rolle für die Flammenstabilisierung in einem Porenbrenner spielen. Obwohl die zahlreichen experimentellen Untersuchungen an Porenbrennern verschiedener Ausführung und mit diversen Schwämmen durchgeführt wurden, sind die Angaben bezüglich der Flammenstabilität noch mangelhaft [102]. Um einen Porenbrenner optimieren zu können, sind die systematischen Untersuchungen des Einflusses verschiedener Struktur- und Stoffparameter auf die Flammenstabilität erforderlich.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, systematische Untersuchungen durchzuführen, die den Einfluss charakteristischer Eigenschaften der porösen inerten Medien (PIM) in Zusammenwirken mit den Eigenschaften des Brenngases auf die Stabilität der Verbrennung beschreiben. Es wurden Erkenntnisse über den Verlauf und die Stabilität der Verbrennung im Schwamm in Abhängigkeit von dessen Geometrie und Materialeigenschaften (Wärmeleitfähigkeit, Porosität, Porengröße) gewonnen. Dabei wurden Schwämme aus zwei unterschiedlichen Werkstoffen im Rahmen dieser Untersuchungen eingesetzt, um den Einfluss der Materialeigenschaften auf den Verbrennungsvorgang beschreiben zu können. Hierfür

wurde einmal das mit sehr hoher Wärmeleitfähigkeit und Emissivität charakterisierte Silizium-infiltrierte Siliziumkarbid (SiSiC) und einmal das schwächer leitende und strahlende Aluminiumoxid untersucht. Die Wärmetransporteigenschaften der Schwämme ergeben sich aus der Strukturgeometrie. Daher ist es möglich, die Wärmetransportvorgänge in den Schwämmen eines Werkstoffes durch die Variation der Porengröße bzw. der Porosität zu beeinflussen. Demzufolge wurde bei den hier durchgeführten Flammenstabilitätsuntersuchungen für den jeweiligen Werkstoff die Porendichte und somit die Porengröße variiert. Die Auswirkung der Schwammporosität auf die Brenngeschwindigkeit im Porenbrenner wurde an Aluminiumoxid-Schwämmen beobachtet.

Die aus diesen Untersuchungen resultierenden Ergebnisse stellen die unbedingte Voraussetzung zur Auslegung und Dimensionierung von Schwämmen für den zukünftigen Einsatz als Pilotbrenner in Gasturbinen dar. Die Ergebnisse der bereits in Literatur veröffentlichten Untersuchungen stellen zwar eine gute Grundlage für die zukünftige Auslegung von atmosphärischen Porenbrennern dar, jedoch steht die quantitative Beschreibung des Stabilitätsmechanismus noch aus. Da die Änderung der Schwammparameter - PPI-Zahl, Porosität, Werkstoff - mehrere entgegengesetzte Einflüsse auf die Flammenstabilität hat, wurde in dieser Arbeit ein Schema der Kopplung der für die Wärmereizirkulation und somit für die Flammenstabilität relevanten Wärmetransportmechanismen (Feststoffwärmeleitung, -strahlung und Strömungsdispersion) vorgeschlagen (Abb. 4.8), um ein besseres Verständnis der in den Stabilitätsuntersuchungen detektierten Phänomene zu erarbeiten. Die Wärmetransportmechanismen durch zwei Medien (Gas und Schwamm), die zur Wärmereizirkulation aus der heißen Reaktionszone in die Vorwärmzone beitragen, sind parallel geschaltet. Die erforderliche Wechselwirkung zwischen zwei Phasen ist anhand des konvektiven Wärmeübergangs berücksichtigt. Dementsprechend sind die Wärmeübergangsterme und die Wärmerückführung durch die feste Phase hintereinander geschaltet. Wie schon besprochen sind alle hier betrachteten Wärmetransportmechanismen von der Strukturgeometrie, einige auch von Werkstoffparametern, abhängig. Die komplexe Wechselwirkung aller Einflussparameter hat eine unterschiedliche Auswirkung auf jeden Wärmetransportmechanismus. Zur Bestimmung der gesamten Auswirkung einer Parameteränderung auf die Wärmereizirkulation und somit auf die Flammenstabilität wurde in dieser Arbeit eine Abschätzung der Größenordnung für die jeweiligen betrachteten Transportterme und für jede untersuchte Schwammstruktur durchgeführt. Somit konnte ein besseres Verständnis des in Experimenten detektierten Stabilitätsverhaltens gewährleistet werden.

Die experimentellen Stabilitätsuntersuchungen zeigten, dass eine mit der Erhöhung der Porendichte verknüpfte Reduktion der Flammenstabilität in einem Aluminiumoxid-Porenbrenner für beide untersuchten Einlasstemperaturen der Verbrennungsluft zu beobachten ist. Anhand der durchgeführten Abschätzung der Größenordnungen relevanter Wärmetransportmechanismen und unter Betrachtung des vorgeschlagenen Kopplungsschemas wurde im Fall von Al_2O_3 -Schwämmen der

Wärmetransport mittels Festkörper-zu-Festkörper Strahlung als wesentliche Größe festgestellt. Eine Änderung des Betrags des Wärmetransports mittels Strahlung hat deshalb eine entscheidende Auswirkung auf die Flammenstabilität. Demzufolge weist der 20 PPI Al_2O_3 Brenner aufgrund seines höheren Extinktionskoeffizienten einen schlechteren Stabilisierungseffekt als der 10 PPI Al_2O_3 Brenner auf. Zusätzlich wird die Wärmerückführung in der Gasphase in 20 PPI Al_2O_3 Brenner durch die geringere Strömungsdiskretion reduziert.

Das Stabilitätsverhalten von SiSiC-Schwämmen mit 10 PPI bzw. 20 PPI unterscheidet sich deutlich von der detektierten Verhaltensweise in den untersuchten Aluminiumoxid-Brenner. Bedingt durch die hohe Wärmeleitfähigkeit und Emissivität der SiSiC-Schwämme ist es nicht zu erwarten, dass der Wärmetransport durch die Wärmeleitung und Strahlung in der festen Phase zwingend der bestimmende Schritt für die Wärmerückführung ist, wie anhand des Al_2O_3 -Brenners beobachtet. Es gilt, abhängig von der Strömungsgeschwindigkeit konkurrieren die Wärmerückführung im Festkörper und der konvektive Wärmeübergang in einem SiSiC-Brenner miteinander. Daher weisen die beiden untersuchten Brenner, 10 und 20 PPI, den gleichen Stabilisierungseffekt bei geringeren Luftvorwärmtemperaturen bzw. Strömungsgeschwindigkeiten auf. Erst bei höheren eingesetzten Strömungsgeschwindigkeiten ist ein Unterschied zwischen zwei Brenner festzustellen, wobei der 20 PPI SiSiC Brenner eine höhere Flammenstabilität gewährleisten kann. Da alle betrachteten Wärmetransportmechanismen die gleiche Größenordnung aufweisen, wird das Problem viel komplexer als im Falle eines Alumina-Brenners. Hierbei muss die Auswirkung der Änderung der Strukturgeometrie auf alle Wärmetransportmechanismen gleicher Größenordnung in Betracht genommen werden.

Die gewonnenen Stabilitätsdiagramme zeigen eine im Vergleich zur laminaren Flamme erhebliche Erhöhung der Flammenstabilität in einem Porenbrenner. Dieses Phänomen wurde für alle untersuchten Brennerkonfigurationen und Bedingungen detektiert. Der Betrag des in einem Porenbrenner festgestellten Stabilisierungseffektes nähert sich der Größenordnung aerodynamisch stabilisierter Diffusionsflammen [169], jedoch ohne begleitende hohe Schadstoffemissionen der letzteren. Es wurde gezeigt, dass die maximale erreichbare Leistungsdichte einer Gleichdrall-Diffusionsflamme von der gleichen Größenordnung ist wie die des 20 PPI SiSiC-Brenners. Dies gilt im Besonderen für die höheren Luftzahlen.

Bedingt durch die unterschiedlichen maximalen einsetzbaren Temperaturen der Al_2O_3 - und SiSiC-Schwämme war es nicht möglich die Stabilitätsuntersuchungen für die gleichen Betriebsbedingungen durchzuführen. Dennoch kann ein Vergleich unterschiedlicher Brennerkonfigurationen für das Überlappungsfeld der stabilen Betriebsbereiche gemacht werden. Die aus SiSiC hergestellten Schwämme gewährleisten eine bessere Flammenstabilität für alle gemeinsamen Betriebspunkte als die Al_2O_3 -Schwämme. Dieser Trend ist aufgrund der hervorragenden Wärmetransporteigenschaften der SiSiC-Schwämme zu erwarten. Dementsprechend

sollen für die hier untersuchte Anwendung die SiSiC-Schwämme bevorzugt werden und zwar nicht nur aufgrund ihres hohen Stabilisierungseffekts sondern auch aufgrund ihrer hohen mechanischen Stabilität. Jedoch ist die maximale Betriebstemperatur der Al_2O_3 -Schwämme (1600°C) deutlich höher als die der SiSiC-Schwämme. Daher können die Aluminiumoxid-Schwämme für bestimmte Anwendungen günstiger sein.

Simultan mit den Flammenstabilitätsuntersuchungen wurde für jeden Betriebspunkt eine Analyse des Rauchgases durchgeführt. Da im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine Untersuchung der potentiellen Anwendung der Porenbrennertechnik in Pilotbrenner der Gasturbinen liegt, wurde für Bewertung der ermittelten Schadstoffwerte der gesetzliche Grenzwert für die NO_x -Emission der Gasturbinen verwendet. Die gemessenen Konzentrationswerte der Stickoxide in den untersuchten Porenbrennern liegen weit unter dem von der Gesetzgebung geforderten Grenzwert. Im ausgelegten Porenbrenner findet der Brennstoffabbrand nur in einer relativ dünnen Zone im Schwamm statt. Die Konversion von CO zu CO_2 erfolgt dagegen in einer relativ breiten Ausbrandzone, da die Länge der heißen porösen Struktur 200 mm beträgt. Somit wird eine ausreichend lange Verweilzeit gesichert, so dass das Kohlenmonoxid effektiv in Kohlendioxid umgewandelt werden kann. Innerhalb des stabilen Betriebsbereichs sind deshalb die gemessenen CO -Konzentrationen gering und annähernd gleich für alle untersuchten Brennerkonfigurationen. Es besteht daher die Möglichkeit den Porenbrenner unter solchen Bedingungen zu betreiben in welchen beide, CO - und NO_x -Emissionen, sehr gering sind.

Die heiße glühende Schwammstruktur am Porenbrenneraustritt strahlt im Falle der hier untersuchten unter atmosphärischem Druck betriebenen Anlage ohne Strahlungsschild in die kalte Umgebung, was zu einer Absenkung der Temperatur in Richtung Brennerauslass führt. Um diesen Wärmeverlust in eine eindimensionale numerische Simulation der Verbrennung in PIM einzubeziehen, wird die Schwammtemperatur am Brenneraustritt als Randbedingung benötigt. Aus diesem Grunde wurde im Rahmen dieser Arbeit die Schwammtemperatur am Brenneraustritt mittels Strahlungsipyrometrie für diverse Prozessbedingungen gemessen. Aufgrund ihres hohen Emissionsgrads wurden für diese Untersuchung SiSiC Schwämme mit 10 PPI gewählt. Die Messungen wurden mittels eines Quotientenstrahlungsipyrometers bei diversen Prozessbedingungen (thermische Leistung, Luftzahl, Luftvorwärmtemperatur) durchgeführt. Die Messungen zeigten, dass die Schwammtemperatur am Brennerauslass mit steigender thermischer Leistung bei einer gleichen Luftzahl steigt. Dieses Phänomen ist auf die Minderung der relativen Wärmeverluste mit Erhöhung der thermischen Leistung zurückzuführen.

Die Abgasanalyse im Brennerraum selbst lässt eine Aussage auf den Ablauf der Verbrennungsreaktionen im untersuchten Porenbrenner zu. Hierbei wurde eine

Verdickung der Flammenfront relativ zur laminaren Flamme detektiert. Mit Erhöhung der Luftzahl wurde eine Erhöhung der Flammendicke beobachtet.

Entwicklung und Optimierung der durch Einsetzen der porösen netzartigen Strukturen ausgeführten Prozesse kann durch die Anwendung der mathematischen Modelle solcher Systeme deutlich beschleunigt werden. Andererseits verhindern die geometrische Komplexität und die räumliche Orientierung der festen Phase in festen Schwämmen das Lösen der Transportgleichungen auf der Porenebene für die relevante räumliche Ausdehnung. Die in der Literatur vorhandenen Modelle für die Verbrennung in festen Schwämmen [13, 106, 158] können die Temperaturmaxima und die damit zusammenhängenden NO_x -Emissionen in einem Porenbrenner erfolgreich voraussagen. Jedoch können die meisten Modelle die in Experimenten detektierte beträchtliche Erhöhung der Brenngeschwindigkeit und die Tendenz der Abhängigkeit der Brenngeschwindigkeit von der Luftzahl nicht vorhersagen. Motiviert durch diese Überlegungen wurde als Ziel der vorliegenden Arbeit ein eindimensionales numerisches Modell der Verbrennung in keramischen Schwämmen definiert, welches die experimentell detektierten Flammenstabilitätsgrenzen mit ausreichender Zuverlässigkeit wiedergibt. Darüber hinaus soll ein solches numerisches Modell einen tieferen Einblick in den Flammenstabilisierungsmechanismus im Porenbrenner ermöglichen. Daher wurde zusätzlich zur experimentellen Untersuchung die Verbrennung im porösen Medium durch Lösen der eindimensionalen Modellgleichungen berechnet. Als Ausgangsbasis wurde ein auf der Software CHEMKIN basierender Code für die Lösung der Stoff- und Energietransportgleichungen verwendet, in dem die folgenden physikalischen Effekte berücksichtigt sind:

- Wärmeleitung der Gasphase
- Wärmeleitung des Festkörpers
- Wärmeübergang zwischen Gas und Festkörper
- Strahlung des Festkörpers
- Hydrodynamische Dispersion
- Diffusion der Spezies
- Chemische Umwandlung auf Basis eines detaillierten, chemischen Mechanismus

Die für die Berechnung benötigten Schwammparameter wurden anhand der Literaturdaten modelliert unter Verwendung der für die untersuchten Schwämme mittels MRI bzw. CT ermittelten geometrischen Kenngrößen [164]. Darüber hinaus existieren in der Literatur bezüglich der Strömungsdispersion nur empirische, meistens für die Kugelschüttungen abgeleitete Korrelationen. Da diese Kenngrößen stark von der Schwammtopologie abhängig sind, wurden die

Dispersionskoeffizienten für die untersuchten Schwammstrukturen durch dreidimensionale numerische Simulationen ermittelt.

Zunächst wurde der mit dem in dieser Arbeit vorgeschlagenen Modell berechnete Temperaturverlauf im Porenbrenner analysiert. Eine aktuelle Untersuchung der Verbrennung im Porenbrenner von Steven [179] wurde im Jahre 2008 veröffentlicht und deutet darauf hin, dass das Problem großer Abweichungen zu experimentellen Daten bei der Vorhersage der Größe der Temperaturgradienten im Bereich der größten Wärmefreisetzung immer noch ungelöst ist. Obwohl die maximale Temperatur in der Verbrennungszone und am Ende der Verbrennungszone des Porenbrenners in Experiment und Simulation in dieser Studie [179] relativ gut übereinstimmte, konnte die experimentell detektierte starke Verdickung der Flammenfront mit dieser Simulation nicht wiedergegeben werden. Im Gegensatz dazu weist ein aus der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Simulation gewonnener Temperaturverlauf eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, sowohl bezüglich des Temperaturmaximums als auch bezüglich des höchsten Temperaturgradienten in der Flammenfront, auf. Die gute Wiedergabe der Abflachung des Temperaturgradienten in der Flammenfront bei der Verbrennung im Schwamm, welche mit dem vorliegenden Modell erreicht wird, beruht auf der Berücksichtigung des Effektes der Strömungsdispersion, welcher in anderen Modellen üblicherweise vernachlässigt wird.

Wie schon bei den experimentellen Untersuchungen bestätigt wurde, sind Feststoffwärmeleitung, Feststoffstrahlung und Strömungsdispersion die dominierenden und damit bestimmenden Transportprozesse für die Flammenstabilisierung in einem mit einem keramischen Schwamm bestückten Porenbrenner. Mit dem Ziel die relative Wichtigkeit dieser Transportmechanismen für die Flammenstabilisierung im Porenbrenner zu untersuchen, wurden mehrere Modifikationen des vorgeschlagenen numerischen Modells verwendet. In jeder Modellmodifikation wurden ein oder mehrere Wärmetransportmechanismen ausgeschaltet und die entsprechende Auswirkung auf die Brenngeschwindigkeit beobachtet. Die Wärmeleitung der Gasphase, der konvektive Wärmeübergang und die Speziesdiffusion wurden in allen untersuchten Modellmodifikationen berücksichtigt.

Aus diesen Untersuchungen hat sich gezeigt, dass die durch die Strömungsdispersion erhöhte thermische und Stoffdiffusivität zur Abflachung der Temperatur- und Konzentrationsprofile führen, so dass sich der Gastemperaturverlauf dem des Schwammes annähert. Diese Abflachung der Temperatur- und Konzentrationsverläufe und als Konsequenz daraus die Verdickung der Flammenfront führt analog zu turbulenten Flammen zu einer Erhöhung der Umsatzrate und damit der Brenngeschwindigkeit.

Um die Auswirkung der betrachteten Phänomene auf die Flammenstabilität zu untersuchen, wurden Rechnungen für alle untersuchten Modifikationen des numerischen Modells für eine Reihe an Luftzahlen bei unterschiedlichen Luftvorwärmtemperaturen ($T_{VW}=25^{\circ}\text{C}$ und $T_{VW}=350^{\circ}\text{C}$) durchgeführt. Die ermittelten Stabilitätsdaten wurden mit entsprechenden gemessenen Daten verglichen. Die mit Modellen ohne Strömungsdispersion berechneten Brenngeschwindigkeiten waren deutlich geringer als die experimentell gemessenen. Darüberhinaus weisen die aus diesen Modellen erhaltenen Brenngeschwindigkeitskurven annähernd die gleiche Steigung auf, wie diejenige der laminaren Flammen. Da der Gradient der experimentell ermittelten Brenngeschwindigkeit-Luftzahl-Abhängigkeit wesentlich höher ist als derjenige der entsprechenden Funktion für die laminare Flamme kann rückgeschlossen werden, dass einige zusätzliche Phänomene, welche die Flammenstabilisierung in Porenbrenner beeinflussen, in diesen Modellen noch nicht berücksichtigt sind. Daher konnte die große Steigung der Brenngeschwindigkeit-Luftzahl-Abhängigkeit nur unter Berücksichtigung des Beitrages der Strömungsdispersion zur Flammenstabilisierung erreicht werden. Schließlich können so hohe Brenngeschwindigkeiten, wie sie experimentell detektiert wurden, mit einer eindimensionalen numerischen Simulation nur dann ermittelt werden, wenn alle hier untersuchten Wärmetransportmechanismen (Feststoffwärmeleitung, Feststoffstrahlung und Strömungsdispersion) berücksichtigt werden.

Gemäß der Theorie ist es möglich eine „superadiabatische Verbrennungstemperatur“ zu erreichen, wenn die poröse Matrix bei der Verbrennung im porösen inerten Medium so gewählt ist, dass sie eine effektive Wärmereizirkulation bewirkt. Dementsprechend werden Verbrennungstemperaturen erreicht, die lokal höher liegen als die zu den Betriebsbedingungen gehörige, adiabate Flammentemperatur. In diesem Zusammenhang wurden die vorgestellten numerischen Modellmodifikationen auch zur Untersuchung der Flammentemperatur verwendet. Die Ergebnisse zeigten, dass die aus allen untersuchten numerischen Modellmodifikationen berechneten Verbrennungstemperaturen höher als die im untersuchten Luftzahlbereich zugehörige, adiabate Flammentemperatur sind. Die Berücksichtigung der Strömungsdispersion führt jedoch zu einer Absenkung der Verbrennungstemperatur, bedingt durch die stark intensivierte effektive thermische Diffusion des Gases. Somit wird, relativ zu den Modellen ohne Dispersion, die aus der Reaktion freigesetzte Wärme noch besser stromaufwärts transportiert, was in einer Minderung der Temperaturspitze resultiert.

Um den möglichen Anwendungsbereich des vorgeschlagenen numerischen Modells zu bestimmen, wurden die numerische Simulationen für alle experimentell untersuchten Brennerkonfigurationen bezüglich der Verbrennungszone (10 PPI SiSiC, 20 PPI SiSiC, 10 PPI Al_2O_3 , 20 PPI Al_2O_3) und für unterschiedliche Luftvorwärmtemperaturen durchgeführt. Eine sehr gute Übereinstimmung ist in den meisten untersuchten Fällen zu beobachten. Jedoch ist ein systematischer Fehler in der Wiedergabe der Steigung der Stabilitätskurve für einige Kombinationen der

Brennerkonfigurationen und Prozessbedingungen zu sehen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die verwendeten Modelle aus der Literatur zur Beschreibung der thermophysikalischen Eigenschaften der untersuchten Schwämme es nicht erlauben die Transportprozesse in den hier experimentell untersuchten Strukturen mit ausreichender Genauigkeit wiederzugeben.

Darüber hinaus wurde im Rahmen dieser Arbeit anhand von numerisch ermittelten Daten ein halbempirisches auf der Pe-Zahl basiertes Stabilitätsmodell vorgeschlagen. Dieses Modell stellt ein vereinfachtes Kriterium dar, welches eine Vorhersage der Stabilitätsgrenzen für das hier untersuchte Verbrennungssystem anhand seiner globalen Größen ermöglicht. Jedoch ist die Vorhersagbarkeit des vorgeschlagenen Stabilitätsmodells stark durch die sogar bei den Schwämmen vom gleichen Hersteller auftretenden Ungleichmäßigkeiten in der Schwammtopologie begrenzt.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Flammenstabilitätsuntersuchungen einen wesentlichen Beitrag zum Verständnis der zugrundeliegenden Phänomene und der komplexen Wechselwirkungen zwischen der Schwammgeometrie und dem Verbrennungsvorgang in einem Porenbrenner leisten. Darüber hinaus kann das vorgeschlagene numerische Modell sowohl den Temperaturverlauf im Bezug auf den höchsten Gradient und das Temperaturmaximum, als auch die Flammenstabilitätsgrenzen und ihre Abhängigkeiten von der Stöchiometrie mit ausreichender Zuverlässigkeit wiedergeben. Der größte Unterschied ist dabei im Vergleich zu anderen Modelle aus der Literatur die Berücksichtigung des Effektes der Strömungsdispersion auf beide Transportprozesse, Wärme- und Stofftransport, wobei die Dispersionskoeffizienten aus dreidimensionalen numerischen Simulationen der Mikroströmung in **realen** Schwammstrukturen gewonnen wurden. Gleichwohl lassen sich aber hier einige Mankos, welche als Ausblick auf weitere Studien gesehen werden sollten, andeuten.

Die Motivation dieser Arbeit ist die Minderung der Schadstoffemissionen in stationären Gasturbinen, indem der im diffusiven Modus arbeitende Pilotbrenner durch einen mit Porenbrennerkonzept stabilisierten Brenner ersetzt werden soll. Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen unter atmosphärischem Druck mit Variation der Einlasstemperatur der Verbrennungsluft stellen zwar eine gute Basis zum grundlegenden Verständnis der relevanten Phänomene, sie sind aber nicht ausreichend für die praktische Anwendung dieses Konzeptes. Die ausgewählten Porenbrennerkonfigurationen müssen weiter unter den für Gasturbinen typischen Betriebsbedingungen (hohe Vorwärmtemperatur und Druck) bezüglich der Flammenstabilität charakterisiert werden. Dies setzt den Bau eines für überatmosphärische Drücke ausgelegten Prüfstandes voraus. Dabei ergibt sich die Möglichkeit, die in der vorliegenden Arbeit verwendete, zeitaufwendige Messmethode zur Stabilitätsuntersuchung zu verbessern, indem die poröse Verbrennungszone statt einer zylindrischen eine konische Form aufweist. Da sich die

Gasgeschwindigkeit für die gegebenen Einlassbedingungen abhängig von der Position entlang des konischen Porenkörpers ändert, bedingt durch die Veränderung der Querschnittsfläche, wird die Brenngeschwindigkeit somit für die gegebenen Prozessbedingungen eine Funktion der Position der Flammenfront. Darüber hinaus ermöglicht die Analyse der Gaszusammensetzung innerhalb der Flamme (bzw. des Schwammes) sehr wichtige Informationen über den Verbrennungsvorgang zu gewinnen. Dazu kann die in dieser Arbeit vorgeschlagene Methode verwendet und weiter optimiert werden.

Bei der eindimensionalen Modellierung der Verbrennung in festen Schwämmen ist die Vorhersagbarkeit des vorgeschlagenen numerischen Modells durch die Genauigkeit der angenommenen Schwammparameter beschränkt. Die in der Literatur verfügbaren empirischen Korrelationen ermöglichen die Ermittlung unterschiedlicher Schwammparameter nur mit großer Ungenauigkeit, da alle diese Parameter stark von der Schwammtopologie abhängig sind. Darüber hinaus sind die Angaben bei der für die Verbrennungsvorgänge relevanten Temperaturen ($T > 1000$ K) sehr selten zu finden. Für eine bessere Übereinstimmung zwischen der Rechnung und der Messung sind die relevanten Parameter der experimentell untersuchten Schwämme notwendig. Diese können aus den dreidimensionalen numerischen Simulationen gewonnen werden unter Verwendung der MRI bzw. CT Data zur Gittergenerierung. Zu diesem Zweck wird mittels CFD („computational fluid dynamics“) die Mikroströmung innerhalb von realen Strukturen berechnet. Die detaillierte Simulation der Strömung in der Mikrostruktur ermöglicht weiterhin eine Analyse des lokalen Wärmeübergangs vom Fluid zur Struktur und wird eine genauere Quantifizierung des mittleren Wärmeübergangskoeffizienten liefern. Bei der Verbrennung in festen Schwämmen kommt aufgrund der hohen Temperaturen insbesondere der Strahlungswärmeübertragung von fester Phase zu fester Phase eine entscheidende Rolle für den Wärmetransport zu. Die Berücksichtigung dieses Strahlungsanteils am Wärmetransport wird auf Basis der „Monte-Carlo Simulation“ erfolgen. Mit den Ergebnissen dieses Vorhabens werden die Schwachpunkte des in dieser Arbeit vorgeschlagenen Modells, Beschreibung des Strahlungstransports mit der einfachen Rosseland-Gleichung und Bestimmung des entsprechenden Extinktionskoeffizienten, behoben. Darüber hinaus soll die adiabate Auslassbedingung durch eine Randbedingung ersetzt werden, welche die relevanten Wärmeverluste berücksichtigt.

Das im Fokus dieser Arbeit stehende Porenbrennerkonzept bietet eine schadstoffarme Flammenstabilisierung, welche in einer breiten Anwendungspalette von Haushaltsbrenner bis hin zu stationären Gasturbinen zunutze gemacht werden kann. Jedoch verhindert die breite, kommerzielle Anwendung das mangelnde Verständnis der herrschenden, grundlegenden Phänomene. Die Ergebnisse dieser Arbeit ermöglichen einen tieferen Einblick in die Komplexität der Wechselwirkungen zwischen poröser Matrix und den Verbrennungsvorgängen.

Literaturverzeichnis

- [1] European Commission, Strengths, Weaknesses, Opportunities and Threats in Energy Research. EUR 21612, Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 2005.
- [2] Durst, F., Kesting, A., Mößbauer, S., Pickenäcker, K., Pickenäcker, O., Trimis, D. Der Porenbrenner-Konzept, Technik und Anwendungsgebiete. *Gaswärme International* 46, Heft 6, 300-307 (1997).
- [3] Promeos GmbH, Porenbrenner Technologie im Fokus, http://www.promeos.com/cms/upload/pdf/promeos_technologie_folder_deutsch_2007.pdf
- [4] Howell, J. R., Hall, M. J., Ellzey, J.L. Combustion of Hydrocarbon Fuels within Porous Inert Media. *Progress in Energy and Combustion Science* 22, 121-145 (1996).
- [5] Lefebvre, A.H. Gas turbine combustion, 2nd ed. Taylor & Francis (1998)
- [6] Karim, H., Lyle, K., Etemad, S., Smith, L., Pfefferle, W., Dutta, P., Smith, K. Advanced catalytic pilot for low NO_x industrial gas turbines. *ASME TURBO EXPO*, GT-2002-30083 (2002)
- [7] Corr, R., Caron, T., Barnes, J., Meyer, S., Battaglioli, J., Howell, T., Dodge, P. Development of a fuel and air mixer for an 11MW gas turbine catalytic combustion system
- [8] Reitzmann, A., Patcas, F.C., Kraushaar-Czarnetzki, B. Keramische Schwämme - Anwendungspotenzial monolithischer Netzstrukturen als katalytische Packungen. *Chemie Ingenieur Technik* 2006, 78, 1-14.
- [9] Gibson L.J, Ashby M.F. Cellular solids: structure and properties. Cambridge solid state science series, 2nd Ed. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 1997
- [10] Richardson, J.T., Peng, Y., Remue, D. Properties of Ceramic Foam Catalyst Supports: Pressure Drop, *Applied Catalysis A: General* 204, pp. 19-32 (2000)
- [11] Mößbauer, S. Grundlagenuntersuchungen an porösen Flammenreaktoren zur Minimierung von Schadgasemissionen bei der vorgemischten Verbrennung. Bericht an die Max-Buchner-Forschungstiftung, LSTM Bericht Nr. 592/E (1999)

- [12] Schulle, W. Feuerfeste Werkstoffe.: Feuerfestkeramik – Eigenschaften, prüfstechnische Beurteilung, Werkstofftypen. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie GmbH, Leipzig, 1990
- [13] Diezinger, S. Mehrstofffähige Brenner auf Basis der Porenbrennertechnik für den Einsatz in Brennstoffzellensystemen. Dissertation Universität Erlangen Nürnberg. Erlangen, 2006
- [14] Lavrentyeva, O. Entwicklung eines autarken Schäumungsverfahrens zur Herstellung offenzelliger keramischer Schäume. Dissertation Universität Bremen, 2006
- [15] Scheffler, F., Scheffler, M. Natürliche und technische keramische Schäume–Bildung, Herstellung, Makrostruktur. 4. Workshop "Feste Schwämme“, Karlsruhe, 2007
- [16] Roberts, A.P., Gabroczi, E.J. Elastic Properties of Model Random Three-Dimensional Open-Cell Solids. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 50, 33 - 55 (2002).
- [17] Große, J., Dietrich, B., Martin, H., Kind, M., Vicente, J., Hardy, E.H. Volume Image Analysis of Ceramic Sponges. *Chem. Eng. Technol.*, 31, No. 2, 307–314 (2008).
- [18] Garrido, G.I., Patcas, F.C., Kraushaar-Czarnetzki, B. Mass transfer and pressure drop in ceramic foams: A description for different pore sizes. *Chemical Engineering Science*, 63, 5202-5217 (2008).
- [19] Lopes, R.A., Segadaes, A.M. Microstructure, Permeability and Mechanical Behaviour of Ceramic Foams. *Mat. Sci. and Eng.*, A209, 149 - 155 (1996).
- [20] Philipse, A.P., Schram, H.L. Non-Darcian Airflow through Ceramic Foams. *J. Am. Ceram. Soc.*, 74 (1991).
- [21] Innocentini, M.D.M., Salvini, V.R., Macedo, A., Pandolfelli, V.C., Prediction of Ceramic Foams Permeability Using Ergun's Equation. *Materials Research*, 2, 238-289 (1999).
- [22] Brunbauer, S., Emmett, P.H., Teller, E., *J. Amer. Chem. Soc.* 60 (1938) .
- [23] Habisreuther, P., Djordjevic, N., Zarzalis, N. Numerische Simulation der Mikroströmung in porösen inerten Strukturen, *Chemie Ingenieur Technik*, 80 (3), 327-341 (2008).
- [24] Kitware Inc., *The VTK User's Guide*, Colombia, ISBN 1-930934-18-1, (2006).
- [25] Liu, P.S. Mechanical Behaviours of Porous Metals under Biaxial Tensile Loads. *Mater. Sci. Eng.*, A422, 176 - 183 (2006)

- [26] Nieh, T.G., Higashi, K., Wadsworth, J. Effect of Cell Morphology on the Compressive Properties of Open-Cell Aluminium Foams. *Mater. Sci. Eng. A283*, 105-110 (2000).
- [27] Du Plessis, J.P., Masliyah, J.H. Mathematical Modelling of Flow Through Consolidated Isotropic Porous Media. *Transp. Porous Media*, 3, 145-161 (1988).
- [28] Thomson, W. On the division of space with minimum partitional area. *Acta Math.* 11, 121-134 (1887).
- [29] Kusner, R., Sullivan, J.M. Comparing the Weaire-Phelan Equal-Volume Foam to Kelvin's Foam. *Forma*, 11, 233-242 (1996).
- [30] Simone, A.E., Gibson, L.J. The Effects of Cell Face Curvature and Corrugations on the Stiffness and Strength of Metallic Foams. *Acta Mater.* 46, 3929-3935 (1998).
- [31] Grenestedt, J.L., Tanaka, K. Influence of Cell Shape Variations on Elastic Stiffness of Closed Cell Cellular Solids. *Scripta Mater.* 40, 71 – 77 (1999).
- [32] Roberts, A. P., Gabroczi, E.J. Elastic Moduli of Model Random Three-Dimensional Closed-Cell Cellular Solids, *Acta Mater.* 49, 189-197 (2001).
- [33] Buciuman, F.C., Kraushaar-Czarnetzki, B. Ceramic foam monoliths as catalyst carriers. Adjustment and description of morphology. *Ind. Eng. Chem. Res.* 42, 1863-1869 (2003)
- [34] Weaire, D., Phelan, R. The physics of foam. *J. Phys.: Condens. Matter.* 8, 9519-9524 (1996).
- [35] Phelan, R., Weaire, D., Brakke, K. Computation of equilibrium foam structures using the surface evolver. *Exp. Math.* 4, 181-192 (1995).
- [36] Zhu, H. X., Hobdell, J.R., Windle, A.H. Effects of Cell Irregularity on the Elastic Properties of Open-Cell Foams. *Acta Mater.* 48, 4893-4900 (2000).
- [37] Ribeiro-Ayeh, S. Finite Element Modeling of the Mechanics of Solid Foam Materials. Dissertation, KTH Aeronautical and Vehicle Engineering, Stockholm, (2005).
- [38] Andrews, E.W., Gibson, L.J. The Role of Cellular Structure in Creep of Two-Dimensional Cellular Solids. *Mater. Sci. Eng. A303*, 120-126 (2001).
- [39] Huang, L.-S., Gibson, L.J. Creep of Open-Cell Voronoi Foams. *Mater. Sci. Eng. A339*, 220 – 226 (2003).

- [40] Manz, B., Gladden, L.F., Warren, P.B. Flow and Dispersion in Porous Media: Lattice-Boltzmann and NMR Studies. *AIChE Journal*, 45, 1845-1854 (1999).
- [41] Humby, S.J., Biggs, M.J., Tüzün, U. Explicit numerical simulation of fluids in reconstructed porous media. *Chemical Engineering Science*, 57, 1955-1968 (2002).
- [42] Coles, M.E., Hazlett, R.D., Spanne, P., Soll, W.E., Muegge, E.L., Jones, K.W. Pore level imaging of fluid transport using synchrotron X-ray microtomography. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 19, 55-63 (1998).
- [43] Zeiser, T., Steven, M., Freund, H., Lammers, P., Brenner, G., Durst, F., Bernsdorf, J. Analysis of the flow field and pressure drop in fixed-bed reactors with the help of lattice Boltzmann simulations. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 360, 507-520 (2002).
- [44] Bernsdorf, J., Brenner, G., Durst, F. Numerical analysis of the pressure drop in porous media flow with lattice Boltzmann (BGK) automata. *Computer Physics Communications*, 129, 247-255 (2000).
- [45] Maruyama, B., Spowart, J.E., Hooper, D.J., Mullens, H.M., Druma, A.M., Druma, C., Alam, M. K. A New Technique for Obtaining Three-Dimensional Structures in Pitch-Based Carbon Foams. *Scripta Materialia*, 54, 1709 - 1713 (2006).
- [46] Spanne, P., Thorvert, J.F., Jacquin, C.J., Lindquist, W.B., Jones, K.W., Adler, P.M. Synchrotron Computed Microtomography of Porous Media: Topology and Transports. *Physical Review Letters*, 73, 2001-2004 (1994).
- [47] Darcy, H. P. G., *Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon*, Victor Dalmont, Paris (1856).
- [48] Forchheimer, P. Wasserbewegung durch Boden. *Z. Ver. Deutsch. Ing.* 45, 1782-1788 (1901).
- [49] Ergun, S. Fluid flow through packed columns. *Chem. Eng. Progr.* 48, 88-94 (1952).
- [50] Moreira, E.A., Coury, J.R. The Influence of Structural Parameters on the Permeability of Ceramic Foams. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 21 (2004).
- [51] Scheidegger, A. The physics of flow through porous media. University of Toronto Press, Toronto (1974).

- [52] Armatas, G.S. Determination of the effects of the pore size distribution and pore connectivity distribution on the pore tortuosity and diffusive transport in mode porous networks. *Chemical Engineering Science*, 61, 4662-4675 (2006).
- [53] Habisreuther P., Djordjevic, N., Zarzalis N. Statistical Distribution of Residence Time and Tortuosity of Flow through Open-Cell Foams. *Chemical Engineering Science* 64, 4943-4954.(doi:10.1016/j.ces.2009.07.033) (2009).
- [54] Jolls, K.R., Hanratty, T.J. Transition to turbulence for flow through a dumped bed of spheres. *Chemical Engineering Science* 21, 1185-1190 (1966).
- [55] Wegner, T.H, Karabelas, A.J., Hanratty, T.J. Visual studies of flow in a regular array of spheres. *Chemical Engineering Science* 26, 59-63 (1971).
- [56] Dybbs, A, Edwards, R.V. A new look at porous media fluid mechanics. Darcy to turbulent. *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media*, ed. J. Bear und M.Y. Corapcioglu. Martinus Nijhoff publishers, NATO ASI Series, Series E (1984).
- [57] Latifi, M.A., Midoux, N., Stork, A. The use of micro-electrodes in the study of flow regimes in a packed bed reactor with single phase liquid flow. *Chemical Engineering Science* 44, 2501-2508 (1989).
- [58] Seguin, D., Montillet, A., Comiti, J. Experimental characterisation of flow regimes in various porous media I: Limit of laminar flow regime. *Chemical Engineering Science* 53, 21, 3751-3761 (1998).
- [59] Seguin, D., Montillet, A., Comiti, J., Huet, F. Experimental characterisation of flow regimes in various porous media II: Transition to turbulent regime. *Chemical Engineering Science* 53, 22, 3897-3909 (1998).
- [60] Hall, M. J., Hiatt, J.P. Measurements of pore scale flows within an exiting ceramic foams. *Experiments in Fluids* 20, 433-440 (1996).
- [61] Alvarado, V. Davis, H.T., Scriven, L.E. Effects of pore-level reaction on dispersion in Porous media. *Chemical Engineering Science* 52, 17, 2865-2881 (1997).
- [62] Brenner, G., Zeiser, T., Durst, F. Simulation komplexer fluidier Transportvorgänge in der Verfahrenstechnik. *Chemie Ingenieur Technik* 74, 1533-1542 (2002).
- [63] Taylor, G.I. Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. *Proc. Roy. Soc. A*219, 186, London (1953).
- [64] Taylor, G.I. Conditions under which dispersion of a solute in a stream of solvent can be used to measure molecular diffusion. *Proc. Roy. Soc. A*225, 473, London (1954).

- [65] Aris, R. On the dispersion of a solute in a fluid flowing through a tube. Proc. Roy. Soc. A235, 67, London (1956).
- [66] Bear, J. Dynamics of fluids in porous media. Elsevier Pub. Co., New York (1972).
- [67] Carbonell, R.G., Whitaker, S. Dispersion in pulsed systems. Part II: Theoretical developments for passive dispersion in porous media. Chemical Engineering Science 38, 11, 1795-1802 (1983).
- [68] Maier, R.S., Kroll, D.M., Bernard, R.S., Howington, S.E., Peters, J.F., Davis, H.T. Enhanced dispersion in cylindrical packed beds. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A360, 497-506 (2002).
- [69] Han, N-W., Bhakta, J., Carbonell, R.G. Longitudinal and lateral dispersion in packed beds: Effect of column length and particle size distribution. AIChE Journal 31, 2, 277-288 (1985).
- [70] Koch, D.L., Brady, J.F. Dispersion in fixed beds. J. Fluid Mech. 154, 399-427 (1985).
- [71] Saffman, P.G. A theory of dispersion in porous media. J. Fluid Mech. 6, 321-349 (1959).
- [72] Wakao, N., Kaguei, S. Heat and Mass Transfer in Packed Beds, Gordon and Breach, New York, p.215 (1982).
- [73] Hassinger, R.C., von Rosenberg, D.U. A mathematical and experimental examination of transverse dispersion coefficients. Society of Petroleum Engineers Journal 243, 195-204 (1968).
- [74] Bijeljic, B., Muggeridge, A.H., Blunt, M.J. Pore-scale modeling of longitudinal dispersion. Water Resources Research 40, W11501 (2004).
- [75] Lee, H.T., Neethling, S.J., Cilliers, J.J. Particle and liquid dispersion in foams. Colloids and Surfaces A: Physiochem. Eng. Aspects 263, 320-329 (2005).
- [76] Benneker, A.H., Kronberg, A.E., Post, J.W., Van Der Ham, A.G.J., Westerterp, K.R. Axial dispersion in gases flowing through a packed bed at elevated pressures. Chemical Engineering Science 51, 10, 2099-2108 (1996).
- [77] Amaral Souto, H.P. Moyne, C. Dispersion in two-dimensional periodic porous media. Part I: Hydrodynamics. Phys. Fluids 9, 8, 2243-2252 (1997).
- [78] Stemmet, C.P., Meeuwse, M., Schaaf, J.van der, Kuster, B.F.M., Schouten, J.C. Gas-liquid mass transfer and axial dispersion in solid foam packings. Chemical Engineering Science 62, 5444 – 5450 (2007).

- [79] Benz, P., Hütter, P., Schlegel, A. Radiale Stoffdispersionskoeffizienten in durchströmten keramischen Schäumen. *Wärme und Stoffübertragung* 29, 125-127 (1993).
- [80] Hackert, C.L., Ellzey, J.L., Ezekoye, O.A., Hall, M.J. Transverse dispersion at high Peclet numbers in short porous media. *Experiments in Fluids* 21, 286-290 (1996).
- [81] Carvalho, J.R.F.G. de, Delgado, J.M.P.Q. Lateral dispersion in liquid flow through packed beds at $Pe_m < 1400$. *AIChE Journal* 46, 1089-1095 (2000).
- [82] Ahmadi, A., Aigueperse, A., Quintard, M. Calculation of the effective properties describing active dispersion in porous media: from simple to complex unit cells. *Advances in Water Resources* 24, 423-438 (2001).
- [83] Sahimi, M. Flow and transport in porous media and fractured rock: from classical methods to modern approaches. VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, Germany (1995).
- [84] Pereira, J.C.F., Malico, I., Hayashi, T.C., Raposo, J. Experimental and numerical characterisation of transverse dispersion at the exit of a short ceramic foam inside a pipe. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 48, 1-14 (2005).
- [85] Whitaker, S. Diffusion and dispersion in porous media. *AIChE Journal* 13, 420-432 (1967).
- [86] Delgado, J.M.P.Q. Longitudinal and Transverse Dispersion in Porous Media. *Chemical Engineering Research and Design* 85, 1245-1252 (2007).
- [87] Lefebvre, S., Chaouki, J., Guy, C. Solid Phase Hydrodynamics of Three-Phase Fluidized Bed Reactors – A Convective/Dispersive Phenomena. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 5, A3 (2007).
- [88] Schlünder, U.E., Tsotsas, E. Wärmeübertragung in Festbetten, durchmischten Schüttungen und Wirbelschichten. Georg Thieme Verlag, Stuttgart (1988).
- [89] Habis Dispersion
- [90] Hsu, P.F., Howell, J.R. Measurements of thermal conductivity and optical properties of porous partially stabilized zirconia. *Experimental Heat Transfer* 5, 293-313 (1993).
- [91] Pan, H.L., Pickenäcker, O., Pickenäcker, K., Trimis, D., Mößbauer, S., Wawrzinek, K., Weber, T. Experimental determination of effective conductivities of highly porous media. LSTM University Erlangen-Nürnberg, Germany ().

- [92] Fu, X., Viskanta, R., Gore, J.P. Prediction of effective thermal conductivity of cellular ceramics. *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, 25, 2, 151-160 (1998).
- [93] Boomsma, K., Poulikakos, D. On the effective thermal conductivity of a three-dimensionally structured fluid-saturated metal foam. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 44, 827-836 (2001).
- [94] Dul'nev, G.N. Heat Transfer through Solid Disperse Systems. *Journal of Engineering Physics*, translation from *Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal* 9, 399-404 (1965).
- [95] Whitaker S. Simultaneous heat, mass and momentum transfer in porous media: a theory of drying, *Adv. Heat Transfer* 13, 119-203 (1977).
- [96] Glicksman, L., Schuetz, M., Sinofsky, M. Radiation heat transfer in foam insulation. *Int. J. Heat Mass Transfer* 30, 1, 187-197 (1987).
- [97] Doermann D, Sacadura JF. Heat transfer in open cell foam insulation. *ASME J. Heat Transfer* 118, 88-93 (1996).
- [98] Hendricks, T.J., Howell, J.R. Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *J. Heat Transf.* 118, 1, 79-87 (1996).
- [99] Argento C, Bouvard D. A ray tracing method for evaluating the radiative heat transfer in porous media. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 39, 1380-1375 (1996).
- [100] Tancrez M, Taine J. Direct identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47, 373-383 (2004).
- [101] Petrasch J, Wyss P, Steinfeld A. Monte Carlo determination of radiative properties of reticulate porous ceramics. *J. Quant. Spectrosc. Radiat.* 105, 180-197 (2007).
- [102] Mendes, M.A.A., Pereira, J.M.C., Pereira, J.C.F. A numerical study of the stability of one-dimensional laminar premixed flames in inert porous media. *Combustion and Flame*, 153, 525-539 (2008).
- [103] Zhou, X.Y., Pereira, J.C.F. Numerical Study of Combustion and Pollutants Formation in Inert Nonhomogenous Porous Media. *Combustion Science and Technology* 130, 335-364 (1997).
- [104] Zhou, X.Y., Pereira, J.C.F. Comparison of Four Combustion Models for Simulating the Premixed Combustion in Inert Porous Media. *Fire and Materials* 22, 187-197 (1998).

- [105] Barra, A.J., Diepvens, G., Ellzey, J.L., Henneke, M.R. Numerical study of the effects of material properties on flame stabilization in a porous burner. *Combustion and Flame* 134, 369-379 (2003).
- [106] Barra, A.J., Ellzey, J.L. Heat recirculation and heat transfer in porous burners. *Combustion and Flame* 137, 230-241 (2004).
- [107] Talkudar, P., Steven, M., Issendorf, F.V., Trimis, D. Finite volume method in 3-D curvilinear coordinates. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 48, 4657-4666 (2005).
- [108] Viskanta R, Mengüç MP. Radiative transfer in dispersed media. *ASME, Appl. Mech. Rev.* 42, 9, 241-259 (1989).
- [109] Decker, S., Mößbauer, S., Nemoda, D.T., Zapf, T. Detailed experimental characterization and numerical modeling of heat and mass transport properties of highly porous media for solar receivers and porous burners. LSTM Universität Erlangen-Nürnberg, Erlangen, Germany (2000).
- [110] Bhattacharya, A., Calmidi, V.V., Mahajan, R.L. Thermophysical properties of high porosity metal foams. *Int. J. Heat Mass Transfer* 45, 1017-1031 (2002).
- [111] Dukhan, N., Quinones-Ramos, P.D., Cruz-Ruiz, E., Vélez-Reyes, M., Scott, E.P. One-dimensional heat transfer analysis in open-cell 10-ppi metal foam. *Int. J. Heat Mass Transfer* 48, 5112-5120 (2005).
- [112] Younis, L.B., Viskanta, R. Experimental determination of the volumetric heat transfer coefficient between stream of air and ceramic foam. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 36, 1425-1434 (1993).
- [113] Schlegel, A., Benz, P., Buser, S. Wärmeübertragung und Druckabfall in keramischen Schaumstrukturen bei erzwungener Strömung. *Wärme- und Stoffübertragung* 28, 259-266 (1993).
- [114] Peng, Y., Richardson, J.T. Properties of ceramic foam catalyst supports: one-dimensional and two-dimensional heat transfer correlations. *Applied Catalysis A*, 266, 235-244 (2004).
- [115] Fend, T., Hoffschmidt, B., Pitz-Paal, R., Reutter, O. Porous materials as open volumetric solar receivers: Experimental determination of thermophysical and heat transfer properties *Energy*, 29, 823-833 (2004).
- [116] Martin, H. Die Lévêque-Analogie – eine bisher unbeachtete Analogie zwischen Impuls-, Wärme- und Stofftransport und ihr praktischer Nutzen für die Verfahrenstechnik. *Chem. Ing. Tech.* 68, 9, 1077-1078 (1996).

- [117] Martin, H. The generalized L ev eque equation and its practical use for the prediction of heat and mass transfer rates from pressure drop. *Chem. Eng. Science* 57, 3217-3223 (2002).
- [118] Schabel, W., Abu-Khader, M., Dietrich, B., Martin, H. Heat and momentum transfer in solid sponges-reevaluation and review of literature data. 13th International Heat Transfer Conference (2006).
- [119] Warnatz, J., Maas, U. *Technische Verbrennung*, Springer Verlag (1993)
- [120] Kee, J. F. M., Grcar, J. F., Smooke, M. D., Miller, J. A. PREMIX: A FORTRAN program for modeling steady laminar one-dimensional premixed flames. Report, Sandia National Laboratories, Livermore, CA (1985).
- [121] Egolfopoulos, F. N., Cho, P., Law, C. K. Laminar flame speeds of Methane-Air mixtures under reduced and elevated pressures. *Combust. Flame* 76, 375-391 (1989).
- [122] Peters, N. Skriptum zur Vorlesung „Technische Verbrennung“, RWTH Aachen (2006)
- [123] Brutscher, T. M. Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Entflammung und Flammenausbreitung bei funkengez ndeten Brenngas-Luft-Gemischen unter besonderer Ber cksichtigung bevorzugter Diffusion. Dissertation, Universit t Karlsruhe (TH) 2003.
- [124] Hoffman, A.B. Modellierung turbulenter Vormischverbrennung. Dissertation, Universit t Karlsruhe (TH) 2004.
- [125] Mallard, F.E., Le Chatelier, H.L. Recherches Experimentelles et Theoretiques sur la Combustion des Melanges Gaseux Explosifs. *Ann. Mines*, 8 (4), pp. 274 (1883)
- [126] Zeldovich, Ya. B., Sadovnikov, P. Ya., Frank-Kamenetzki, D. A. Oxidation von Stickstoff bei der Verbrennung. Akademie der Wissenschaften der UdSSR, Moskau (1947)
- [127] Fenimore, C. P. 13th Symp. (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, USA, pp. 373, (1970)
- [128] Stapf, D., Leuckel, W. Flow reactor studies and testing of comprehensive mechanisms for NOX reburning. 26th Symp. (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, USA, pp. (1996)
- [129] Schmid, H.-P. Ein Verbrennungsmodell zur Beschreibung der W rmefreisetzung von vorgemischten turbulenten Flammen. Dissertation, Universit t Karlsruhe (TH) 1995.

- [130] Habisreuther, P. Untersuchungen zur Bildung von thermischem Stickoxid in turbulenten Drallflammen. Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) 2002.
- [131] Zeldovich, Ya. B. The oxidation of nitrogen in combustion and explosions. *Acta Physicochimica* 21, USSR, pp. 577 (1946).
- [132] Warnatz, J., Maas, U., Dibble, R. W. Verbrennung – Physikalisch-chemische Grundlagen, Modellierung und Simulation, Experimente, Schadstoffentstehung, 2. Auflag, Springer Verlag (1997).
- [133] DeSoete, G. G. *Gaswärme International* 30, Nr. 1, 15-23 (1981).
- [134] Sybon, G. Untersuchungen zur Bildung und Emission von NO_x und N₂O bei brennstoffgestufter Verbrennungsführung. Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) 1994.
- [135] Weinberg, F. J. Combustion temperatures: The Future? *Nature* 233 September 24 (1971).
- [136] Takeno, T., Sato, K. An excess enthalpy flame theory. *Combust. Sci. Technol.* 20, 73 (1979).
- [137] Takeno, T., Sato, K. A Theoretical and Experimental Study on an Excess Enthalpy Flame. 7th ICOGER, Gottingen, Germany (1979).
- [138] Kotani, Y., Takeno, T. An experimental study on stability and combustion characteristics of an excess enthalpy flame. 19th Symp. (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, USA, 1503-1509, (1982).
- [139] Chen, Y.-K., Hsu, P. F., Lim, I.-G., Lu, Z.-H., Matthews, R.D., Howell, J.R., Nichols, S.P. Experimental and theoretical investigation of combustion within porous inert media, 22nd Symp. (Int.) on Combustion, Poster paper 22-207, The Combustion Institute, Pittsburgh, USA, (1988).
- [140] Chaffin, C., Koenig, M., Koeroghlian, M., Matthews, R.D., Hall, M.J., Nichols, S.P., Lim, I.G. Experimental investigation of premixed combustion in highly porous media, *Proc. ASME/JSME Thermal Engineering Joint Conf.* 4, 219-224 (1991).
- [141] Hsu, P.F., Evans, W.D., Howell, J.R. Experimental and numerical study of premixed combustion within nonhomogeneous porous ceramics, *Combust. Sci. and Tech.* 90, 149-172 (1993).
- [142] Mathis, W.M., Ellzey, J.I. Flame stabilization, operating range and emissions for a methane/air porous burner. *Combust. Sci. and Tech.* 175, 825-839 (2003).

- [143] Smucker, M.T., Ellzey, J.L., Computational and experimental study of a two-section porous burner. *Combust. Sci. and Tech.* 176, 1171-1189 (2004).
- [144] Vogel, B.J., Ellzey, J.L. Subadiabatic and superadiabatic performance of a two-section porous burner. *Combust. Sci. and Tech.* 177, 1323–1338 (2005).
- [145] Al-Hamamre, Z., Diezinger, S., Talukdar, P., von Issendorf, F., Trimis, D. Combustion of low calorific value gases from landfills and waste pyrolysis using porous medium burner technology, *Process. Saf. Environ.* 84, 297-308 (2006).
- [146] Brenner, G., Pickenäcker, K., Pickenäcker, O., Trimis, D., Wawrzinek, K., Weber, T., Numerical and experimental investigation of matrix-stabilized methane/air combustion in porous inert media. *Combust. Flame* 123, 201-213 (2000).
- [147] Wood, S., Harris, A.T. Porous burners for lean-burn applications. *Progr. En. and Combust. Sci.* 34, 667-684 (2008).
- [148] Trimis D, Durst F, Pickencker O, Pickencker K. Porous medium combustor versus combustion systems with free flames. 2nd International Symposium on Heat Transfer Enhancement and Energy Conservation, pp. 339–345 (1997).
- [149] Mößbauer, S., Pickenäcker, O., Pickenäcker, K. Application of the porous burner technology in energy- and heatengineering. 5th International Conference on Technologies and Combustion for a Clean Environment (Clean Air V), Portugal, Volume 1. pp. 519-523 (1999).
- [150] Mößbauer, S., Durst, F., Trimis, D., Haas, T. Zero Emission Engine-A novel steam engine for automotive applications. 5th International Symposium on Diagnostics and Modelling of Combustion in Internal Combustion engines (COMODIA), Nagoya (2001).
- [151] BIOFLAM Project: development of domestic appliances based on cool flame vaporization and porous medium combustion. Control aspects. 6th International Conference on Technologies and Combustion for a Clean Environment, Oporto (2001).
- [152] Pickenäcker, O., Kesting, A., Trimis, D. Novel low NO_x burner designs for boilers and furnaces by using staged combustion in inert porous media. 5th European Conference on Industrial Furnaces and Boilers (INFUB5), Portugal (2000).
- [153] Kesting, A.,] Pickenäcker, O., Trimis, D., Durst, F. Development of a radiation burner for methane and pure oxygen using the porous burner technology. 5th International Conference on Technologies and Combustion for a Clean Environment, Portugal (1999).

- [154] Hsu, P.-F., Howell, J.R., Matthews, R.D., A numerical investigation of premixed combustion within porous inert media. *J. Heat. Transf.* 115, 744-750 (1993).
- [155] Glarborg, P., Nils, I. L., Stale, B., Magnussen, B. F., Kilpinen, P. and Hupa, M. A reduced mechanism for nitrogen chemistry in methane combustion, 24th Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, pp. 889 – 898 (1992).
- [156] Pickenacker, K., Trimis, D., Durst, F. First periodic report of compact porous medium burner and heat exchanger for household applications, contract No. JOE3- CT95-0019 (1996).
- [157] Hsu, P. F., Matthews, R. D. The necessity of using detailed kinetics in models for premixed combustion within porous media. *Combust. Flame* 93, 457-466 (1993).
- [158] Malico, I., Zhou, X.Y., Pereira, J.C.F. Two-dimensional numerical study of combustion and pollutants formation in porous burners. *Combust. Sci. and Tech.* 152, 57-79 (2000).
- [159] Durst, F., Trimis, D. Compact low emission combustion reactors with integrated heat exchangers using porous medium combustion. 1st European Conference on Small Burner Technology and Heating Equipment, Switzerland, Volume I (1997).
- [160] Malico, I., Pereira, J.C.F. Numerical study on the influence of Radiative properties in porous media combustion. *Journal of Heat Transfer* 123, 951-957 (2001).
- [161] Hayashi, T.C., Malico, I., Pereira, J.C.F. Three-dimensional modelling of a two-layer porous burner for household applications. *Computers and Structures* 82, 1543–1550 (2004).
- [162] Macdonald, I.F., El-Sayed, M.S., Mow, K., Dullien, F.A.L. Flow through porous media-Ergun equation revisited. *Indus. Eng. Chem. Fund.* 18, 199-208 (1979).
- [163] Djordjevic, N., Habisreuther, P., Zarzalis, N. Experimental study on the influence of the pore size of SiSiC sponge on the flame stabilization in a porous burner. *Proc. 4th European Combustion Meeting*, Vienna, Austria (2009).
- [164] Große, J., Dietrich, B., Incera, G., Habisreuther, P., Zarzalis, N., Martin, H., Kind, M., Kraushaar-Czarnetzki, B. Morphological Characterization of Ceramic Sponges for Applications in Chemical Engineering. *Ind. Eng. Chem. Res.*, accepted for publication. (doi:[10.1021/ie900651c](https://doi.org/10.1021/ie900651c)) (2009).

- [165] Zarzalis, N. Skript zur Vorlesung "Angewandte Verbrennungstechnik", Universität Karlsruhe (2008)
- [166] Schreiber, E. Strahlungspyrometer. VDI Wissenforum: Technik der Messung hoher Temperaturen, Seminar 361924, Düsseldorf (2007).
- [167] Neuer, G. Test von Strahlungsthermometern für spezielle Anwendungen und fragen zur Kalibrierung. VDI Wissenforum: Technik der Messung hoher Temperaturen, Seminar 361924, Düsseldorf (2007).
- [168] Garrido, G.I., Patcas, F.C., Kraushaar-Czarnetzki, B. Mass transfer and pressure drop in ceramic foams: A description for different pore sizes. *Chemical Engineering Science* 63, 5202-5217 (2008).
- [169] Merkle, K., Büchner, H., Zarzalis, N., Sara, O.N. Influence of co and counter swirl on lean stability limits of an airblast nozzle. *Proceedings of ASME Turbo Expo 2003*, vol. **GT2003-38004** (2003).
- [170] Hale, M.J., Bohn, M.S. Measurement of the Radiative transport properties of reticulated alumina foams. ASME/ASES Joint Solar Energy Conf. Washington, paper 92-v-842 (1992).
- [171] Munro, R.G. Material properties of a sintered alpha-SiC. *J. Am. Ceram. Soc.* 26, 1195-1203 (1997).
- [172] Munro, R.G. Evaluated material properties for a sintered α -Alumina. *J. Am. Ceram. Soc.* 80, 1919-1928 (1997).
- [173] Turns, S.R. An introduction to combustion. Concepts and applications 2nd ed. McGraw-Hill (2000).
- [174] Philipp, M. Experimentelle und theoretische Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten von Drallflammen mit zentraler Rückstömzone. Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) 1991.
- [175] Weber, R. Scaling characteristics of aerodynamics, heat transfer and pollutant emissions in industrial flames. 29th Symp. (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, 3343-3354 (1996).
- [176] Schmittel, P. Untersuchungen zum Stabilisierungsmechanismus von eingeschlossenen turbulenten Flammen mit innerer Rückströmzone. Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) 2001.
- [177] Steven, M., Mach, A., von Issendorf, F., Altendorfner, M., Delgado, A. Numerical simulation of combustion of a low calorific gas mixture in a porous inert medium taking anisotropic dispersion into account. *Proc. 3th European Combustion Meeting*, Chania, Crete (2007).

-
- [178] Diamantis, D.J., Mastorakos, E., Goussis, D.A. Simulations of premixed combustion in porous media. *Combust. Theory Model.* 6, 383–411 (2002).
- [179] Steven, M. Modellierung und numerische Simulation von Verbrennungsprozessen in Porenbrennern und Rußfiltern. Dissertation. Universität Erlangen-Nürnberg (2008).
- [180] Minx, E. Über die Staukörperstabilisierung turbulenter Diffusionsflammen an Brennern mit zentraler Brenngas- und ringförmiger Luftzufuhr. Dissertation. RWTH Aachen (1969).
- [181] Prade, B. Experimentelle und theoretische Untersuchung zum Ablaseverhalten von turbulenten Stauscheibenflammen. Dissertation. Universität Karlsruhe (TH) 1993.
- [182] Futko S.I., Allowance for turbulence in the models of filtrational combustion of gases, *Combust. Explos. Shock Waves* 38(6):30 (2002).

Nomenklatur

Lateinische Symbole

a	m^2/s	Temperaturleizahl
A	m^2	Fläche
AFR	-	Luft zu Brennstoffverhältnis
A_f	-	Vorfaktor in der Arrhenius-Korrelation
c	mol/m^3	Konzentration
c	-	Reaktionsfortschrittsvariable
c_1	W m^2	erste Strahlungskonstante
c_2	m K	zweite Strahlungskonstante
c_p	$\text{J}/(\text{kg K})$	spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck
C	-	Konstante in der Nu-Re-Beziehung
d	m	Durchmesser
D	m^2/s	Diffusionskoeffizient
e_s	W/m^2	Strahlungsflussdichte
E	J	Energie
E_A	J mol^{-1}	Aktivierungsenergie
FSR	-	Beschleunigungsfaktor
\dot{h}_i	J/kg	spezifische Enthalpie der Spezies i

H_i	J/kg	unterer Heizwert
i_s	W/ (m ³ sr)	Strahlungsintensität
k	m ²	Permeabilität
k	abhängig von der Reaktion	Geschwindigkeitskoeffizient
l	µm	Steglänge
L	m	Länge
m	-	Konstante in der Nu-Re-Beziehung
\dot{m}	kg/ (m ² s)	Massenstromdichte
$\overline{\dot{m}_{BS}}$	kg/ (m ³ s)	Brennstoffabbaurate
M	kg/kmol	Molmasse
n	mol	Stoffmenge
p	Pa	Druck
p_i	Pa	Partialdruck
p_i^S	Pa	Sättigungsdampfdruck
PIM		„porous inert Media“ (Schwamm)
PPI	inch ⁻¹	„pores per inch“
\dot{q}	W/m ²	Wärmefluss
\dot{r}_k	mol/(m ³ s)	Fortschrittsrate der Reaktion k
R	J/(mol K)	universelle Gaskonstante
S_F	m/s	Flammenfrontgeschwindigkeit
S_l	m/s	laminare Brenngeschwindigkeit
S_{PIM}	m/s	Brenngeschwindigkeit im Schwamm
S_V	m ² /m ³	spezifische Oberfläche
t	µm	Stegdicke

t	s	Zeit
T	°C	Temperatur
T_B	°C	adiabate Flammentemperatur
T_Z	°C	Zündtemperatur
u	m/s	lokale Geschwindigkeit
U_0	m/s	Leerrohrgeschwindigkeit
u_D	m/s	Diffusionsgeschwindigkeit
V	m ³	Volumen
\dot{V}	m ³ /s	Volumenstrom
x, y, z	m	Ortskoordinaten
x_{fr}	-	Reibungsanteil des totalen Druckverlusts
X	mol/mol	Molenbruch
Y	kg/kg	Massenbruch

Griechische Symbole

α	m ⁻¹	Absorptionskoeffizient
α	W/(m ² K)	Wärmeübergangskoeffizient
β	m ⁻¹	Extinktionskoeffizient
γ	N/m	Oberflächenspannung
δ	m	Flammendicke
ε	-	Porosität
ε	-	Emissionsgrad
Θ	°	Benetzungswinkel

λ	-	Luftzahl
λ	W/(m ² K)	Wärmeleitfähigkeit
λ	m	Wellenlänge
μ	Pa s	dynamische Viskosität
ν	m ² /s	kinematische Viskosität
ν	-	stöchiometrischer Koeffizient
ρ	kg/m ³	Dichte
σ_B	W/(m ² K ⁴)	Stefan-Boltzmann-Konstante
σ_s	m ⁻¹	Streukoeffizient
σ^2		Varianz der Größe
τ	-	Tortuosität
τ	s	Zeitmaß für die Wärmefreisetzung
χ	-	chemisches Symbol einer Spezies
$\dot{\omega}$	mol/ (m ³ s)	molare Produktionsrate

Subskripte

<i>aus</i>	bez. des Auslasses
<i>ad</i>	bez. der Adsorption
<i>ax</i>	axial
<i>BS</i>	bez. des Brennstoffs
<i>c</i>	chemisch
<i>C</i>	bez. der Zelle
<i>char</i>	charakteristisch

<i>ds</i>	bez. der Desorption
<i>Disp</i>	bez. der Dispersion
<i>eff</i>	effektiv
<i>ein</i>	bez. des Einlasses
<i>EG</i>	Erdgas
<i>F</i>	bez. des Fensters
<i>f</i>	bez. des Fluids
<i>g</i>	bez. des Gases
<i>Gesamt</i>	gesamt
<i>G – S</i>	zwischen Gas und Schwamm
<i>h</i>	hydraulisch
<i>i</i>	Spezies <i>i</i>
<i>k</i>	Reaktion <i>k</i>
<i>kat</i>	bez. des Katalysators
<i>lam</i>	laminar
<i>lok</i>	lokal
<i>L</i>	bez. der Luft
<i>Leerraum</i>	Leerraum
<i>Leit</i>	bez. der Wärmeleitung
<i>m</i>	molekular
<i>mo</i>	Monolage
<i>Nu</i>	zur Definition der Nu-Zahl
<i>p</i>	bez. der Partikel
<i>pore</i>	bez. der Pore
<i>Pe</i>	zur Definition der Pe-Zahl
<i>PIM</i>	bez. des PIM

<i>PPI</i>	basiert auf PPI-Zahl
<i>r</i>	bez. der Strahlung
<i>rad</i>	radial
<i>ref</i>	Bezugswert
<i>rh</i>	ruhend (ohne Durchströmung)
<i>R</i>	bez. der Reaktionszone
<i>Re</i>	zur Definition der Re-Zahl
<i>stoic</i>	stöchiometrisch
<i>S</i>	bez. des Feststoffs
<i>SD</i>	nur Stoffdispersion wird berücksichtigt
<i>sim</i>	bez. der Simulation
<i>t</i>	turbulent
<i>U</i>	unverbrannt
<i>vd</i>	bez. der Verdampfung
<i>V</i>	volumetrisch
<i>VW</i>	bez. der Vorwärmzone
<i>Z</i>	Zünden
<i>Über</i>	bez. Des Wärmeübergangs
λ	spektral

Superskripte

*	erhöht aufgrund der Strömungsdispersion
'	bezogen auf die interstitielle Geschwindigkeit
<i>EG</i>	Erdgas

Dimensionslose Kennzahlen

Da	$Da = \frac{\tau_t}{\tau_c}$	Damköhler-Zahl
Hg	$Hg = -\frac{dp}{dL} \frac{L_{char}^3}{\rho v^2}$	Haagen-Zahl
Nu	$Nu = \frac{\alpha L_{char}}{\lambda}$	Nusselt-Zahl
Pe	$Pe = \frac{u_{char} L_{char}}{a}$	Peclet-Zahl
Pr	$Pr = \frac{\mu c_p}{\lambda}$	Prandtl-Zahl
Re	$Re = \frac{\rho u_{char} L_{char}}{\mu}$	Reynolds-Zahl
Sc	$Sc = \frac{\nu}{D}$	Schmidt-Zahl

LEBENS LAUF

PERSÖNLICHE DATEN

Name Neda Djordjevic
Geburtsdatum 20. Oktober 1980
Geburtsort Kragujevac, Serbien
Familienstand ledig

SCHULAU SBILDUNG

1987-1995 Grundschule "21. Oktober" in Kragujevac, Serbien
1995-1999 1. Gymnasium in Kragujevac, Serbien
Juni 1999 Abschluss: Abitur

STUDIUM

1999-2004 Fakultät für Technologie und Metallurgie, Universität Belgrad,
Belgrad, Serbien
1. Oktober 2004 Abschluss: Diplom (Dipl.-Ing.)

BERUFLICHE TÄTIGKEITEN

01.2005-07.2005 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Lehrstuhl für Textiltechnik
der Fakultät für Technologie und Metallurgie, Universität
Belgrad, Belgrad, Serbien
2005-2009 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Lehrstuhl für
Verbrennungstechnik des Engler-Bunte-Instituts der Universität
Karlsruhe (TH)
02.2010-01.2011 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am CMT-Motores Termicos der
Universität Valencia (TH), Valencia, Spanien
seit Februar 2011 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für technische
Chemie (ITC) des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT),
Karlsruhe, Deutschland

Karlsruhe, den Februar 15, 2011