Untersuchung der Rußbildung und -oxidation in turbulenten nicht vorgemischten Drallflammen – Einfluss von Verbrennungsinstabilitäten

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

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

> genehmigte DISSERTATION

von Dipl.-Ing. Aleksandar Aleksandrov aus Sofia (Bulgarien)

Referent: Prof. Dr.-Ing. Henning Bockhorn Korreferent: Prof. Dr. Rainer Suntz Tag der mündlichen Prüfung: 11.12.2020

## Vorwort

Die vorliegende Dissertationsarbeit ist während meiner Tätigkeit am Engler-Bunte-Institut, Bereich Verbrennungstechnik des Karlsruher Institut für Technologie (KIT) entstanden.

Mein besonderer Dank gilt an erster Stelle meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. Henning Bockhorn, für das mir entgegengebrachte Vertrauen zur Durchführung dieser Arbeit, für die Förderung und Unterstützung bei dieser Tätigkeit, sowie für die wertvollen Diskussionen und Anregungen.

Für die Übernahme des Korreferates und für das tiefergehende Interesse an dieser Arbeit danke ich ganz herzlich Herrn Prof. Dr. Rainer Suntz.

Die sehr fördernde Atmosphäre, die freundliche und offene Zusammenarbeit am Lehrstuhl für Verbrennungstechnik war eine enorme Bereicherung für mich fachlich, sowie als Person und diese Zeit wird für immer besonders positiv in meiner Erinnerung bleiben. Hierfür möchte ich mich ganz herzlich bei allen Kollegen aufrichtig bedanken.

Besonders erwähnen möchte ich meine Kollegen P. Habisreuther, V. Vukadinovic, I. Dinkov, M. Schmitt, M. Charwath, Ch.Kraus, Ch. Weis, S. Hart, V. Madzharov, die mir mit unzähligen fachlichen Anregungen entscheidend weitergeholfen haben.

Weiterhin kommt mein Dank den Damen im Sekretariat D. Reinhardt, S. Zbornik und J. Heneka zu, deren Unterstützung ich mir stets sicher sein konnte.

Das Gelingen dieser experimentellen Arbeit wäre ohne die Mitwirkung der technischen Angestellten H. Pabel, M. Berg, M. Haug und S. Herbel nicht möglich gewesen. Vielen Dank dafür. Für die prompte und kompetente Unterstützung auf den Gebieten EDV und Messdatenerfassung bin ich Herrn W. Pfeffinger besonders dankbar.

*Mein weitaus größter Dank gilt meiner Familie*: meiner Frau Vera, die mir stets ein starker Rückhalt ist, durch ihre Unterstützung, Geduld und Verständnis meine Promotion und die Entstehung dieser Dissertationsarbeit möglich gemacht hat und natürlich meinen Eltern, die immer an mich geglaubt haben!

## Meinem Sohn Adrian und meiner Frau Vera gewidmet!

## Inhaltsverzeichnis

Vorv	wort				vi
	Abbildungsverzeichnis				ix
	Symbol- und Abkürzungsverz	eichnis			xiii
1	Einleitung				1
2	Theoretische Grundlager	۱			5
	2.1 Grundlagen der Verbre	nnung			5
	2.1.1 Turbulente drallstabilis	ierte Flammen			9
	2.1.2 RQL-Verbrennungskon	zept			21
	2.1.3 Verbrennungsinstabilit	äten			22
	2.2 Rußbildung in der Verb	rennung			24
3	Messaufbau und experin	nentelle Method	en		
	3.1 RQL-Modellbrenner				35
	3.2 Angewendete Messme	thoden			
	3.2.1 Zwei Farben-zeitaufgel	östen-LII			
	3.2.2 2D High-Speed PIV				44
	3.2.3 OH*-Chemolumineszer	וz			45
	3.2.4 Intrusive Temperaturm	essung			47
	3.2.5 Bestimmung der Druck	schwankung			47
	3.2.6 Gas Sampling für GC/N	IS Analysen			48
4	Ergebnisse und Diskussic	on			49
	4.1 Turbulente nicht vorge	mischte Drallflamn	ne ohne Verbrenr	านngsinst	abilitäten 49
	4.1.1 Rußeigenschaften ohne	e Verbrennungsinst	abilitäten		
	4.1.2 OH*- Chemoluminesze	nz und Temperatu	verteilung ohne		
	Verbrennungsinstabilit	äten			52
	4.2 Turbulente nicht	vorgemischte	Drallflamme	mit	selbsterregten
	Verbrennungsinstabilit	äten			55
	4.2.1 Druckschwankungen b	ei selbsterregten V	erbrennungsinsta	bilitäten	55

	4.2.2 Temperaturverteilung bei selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten	56
	4.2.3 Rußeigenschaften bei selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten	60
	4.3 Turbulente nicht vorgemischte Drallflamme unter akustischer Anregung o	der
	Strömung	63
	4.3.1 Druckschwankungen	63
	4.3.2 Geschwindigkeitsverteilung in isothermer (nicht reagierender) Strömung	65
	4.3.3 Geschwindigkeitsverteilung in der reaktiven Strömung	72
	4.3.4 OH*-Chemolumineszenz unter akustischer Anregung 1	108
	4.3.5 Temperaturverteilung unter akustischer Anregung	L13
	4.3.6 Rußeigenschaften unter akustischer Anregung der Strömung 1	118
	4.3.7 Rußvorläufermoleküle PAK's unter akustischer Anregung 1	131
5	Zusammenfassung1	.43
6	Summary1	.46
Liter	raturverzeichnis1	.49

# Abbildungsverzeichnis

Abb. 1-1 Bruttostromerzeugung in Deutschland 2018: insgesamt: 647 TWh [1]	1
Abb. 1-2 Struktur der vorliegenden Arbeit.	3
Abb. 2-1 Schematische Darstellung einer laminaren Flammenfront (18).	6
Abb. 2-2 Unterschiedliche Geschwindigkeitsprofile einer laminaren (durchgezogene Linie) und einer	~
turbulenten (gestrichelte Linie) Strömung [18]	9
Abb. 2-3 Darstellung von zwei exemplarischen Messungen des zeitlichen Verlaufs der	
Geschwindigkeit in einer turbulenten Strömung (18)	10
Abb. 2-4 Energieübertragung bei einem Kaskadenprozess (23)	12
Abb. 2-5 Doppellogarithmische Auftragung des turbulenten Energiespektrums (20)	12
Abb. 2-6 Prinzip der Flammenstabilisierung durch innere Rezirkulationszone [30]	16
Abb. 2-7 Verlauf der tangentialen Geschwindigkeit (rot) und des statischen Druckes (blau)	
im Rankine-Wirbel ohne (durchgezogene Linie) und mit (gestrichelte Linie) einer	
Querschnittsveränderung (Düsenaustritt) [35]	18
Abb. 2-8 Auftreten eines Rückströmgebiets beim Erhöhen der Drallzahl [37]	20
Abb. 2-9 Prinzip der Fett-Mager-Verbrennung nach Turns (26)	21
Abb. 2-10 Oxidations- und Pyrolyserouten [2].	27
Abb. 2-11 Prozesse der Rußpartikelbildung aus der Gasphase [83]	28
Abb. 2-12 Kombination von zwei C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> - Radikalen, P.R. Westmoreland, S. 41 in [2]	29
Abb. 2-13 Pyrolyseprodukte der Verbindungen aus den vorherigen Abbildungen [88, 2]	29
Abb. 2-14 PAH- Wachstum nach dem HACA- Mechanismus [2, 91]	30
Abb. 2-15 Abhängigkeit der Ethinbildung in CH <sub>4</sub> /O <sub>2</sub> Flammen vom Äquivalenzverhältnis [14]	31
Abb. 3-1 Doppeldralldüse mit primärem (weiße Pfeile) und sekundärem (gelbe Pfeile) Luftzustrom.	
Der Brennstoff wird mit den roten Pfeilen dargestellt [77]	35
Abb. 3-2 Modellbrenner mit zwei separaten Luftzufuhrkanälen [77]	36
Abb. 3-3 Brennkammer mit optischen Zugängen für die Anwendung von non-intrusiven	
Messmethoden, sowie mit seitlichen Kanälen zur Bestimung der Temperatur, chemische	
Spezies und Druckschwankungen (Mikrofonmessung) [77]	37
Abb. 3-4 RQL-Modellbrenner unter Anregung der Strömung	38
Abb. 3-5 Experimenteller Aufbau der 2-Farben-zeitaufgelösten-LII Messtechnik [94]	39
Abb. 3-6 Vereinfachte Darstellung der Funktionsweise einer Streak-Kamera [95]	40
Abb. 3-7 Messaufbau der 2D High-Speed PIV	44
Abb. 4-1 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Rußeigenschaften - Mittlerer	
normierter Rußvolumenbruch, mittlerer Rußpartikelradius, mittlere	
Rußpartikelanzahldichte - in einer Ebene durch die Düsenachse	50
Abb. 4-2 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Rußeigenschaften –	
Standardabweichung des Rußvolumenbruchs, normierter mittlerer Rußpartikelradius,	
normierte mittlere Rußpartikelanzahldichte- in einer Ebene durch die Düsenachse	51
Abb. 4-3 Integraler Mittelwert der OH*-Chemolumineszenzmessung (links) über	
3900 Einzelaufnahmen und mittleres Temperaturfeld (rechts)	53
Abb. 4-4 Druckschwankung in dem Modellbrenner ohne und mit thermoakustischer	
Verbrennungsinstabilität (BP1 und BP2)	56
Abb. 4-5 Temperaturfeld auf einer Ebene durch die Düsenachse in der Brennkammer für beide	
Betriebspunkte	57

Abb. 4-6 RadialesTemperaturprofil für BP1 und BP2 bei einer HÜB = 18 mm, 32 mm und 46 mm 5	58
Abb. 4-7 Radiales Temperaturprofil für BP1 und BP2 bei einer HÜB = 60 mm, 74 mm und 88 mm 5	59
Abb. 4-8 Radiales Temperaturprofil für BP1 und BP2 bei HÜB = 102 mm	50
Abb. 4-9 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter Rußvolumenbruch	
ohne und mit Auftreten thermoakustischer Verbrennungsinstabilität (BP1 und BP2)6	52
Abb. 4-10 Druckschwankungen in der Brennkammer und in den beiden Plenen (außen und innen)	
unter einer Reihe unterschiedlicher Anregungsfrequenzen	54
Abb. 4-11 Das gemittelte (8000 Bilder) axiale isotherme Geschwindigkeitsfeld in einer Ebene	
durch die Düsenachse unter Anregung der Strömung	<i>55</i>
Abb. 4-12 Standardabweichung der axialen isothermen Geschwindigkeit unter Anregung der	
Strömung	56
Abb. 4-13 Radiale Profile der isothermen gemittelten axialen (unten) und radialen (oben)	
Geschwindigkeitskomponenten auf HÜB = 10 mm und HÜB = 30 mm unter	
Anregung der Strömung 6	57
Abb. 4-14 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld ohne Anregung der Strömung	58
Abb. 4-15 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 $\mu$ s Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer) $\epsilon$	59
Abb. 4-16 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 50 Hz in zehn Phasen mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer)	70
Abb. 4-17 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer)	71
Abb. 4-18 Gemitteltes (8000 Bilder) axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz	
und 350 Hz Anregungsfrequenz in der reaktiven Strömung für Abschnitt 1	
(5-35 mm HÜB), Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) und Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm)	72
Abb. 4-19 Gemitteltes (8000 Bilder) axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz	
und 350 Hz Anregungsfrequenz (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	73
Abb. 4-20 Standardabweichung des axialen Geschwindigkeitsfeldes bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz	
und 350 Hz Anregungsfrequenz in der reaktiven Strömung für Abschnitt 1	
(5-35 mm HÜB), Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) und für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm)	74
Abb. 4-21 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld - ohne Anregung der Strömung	
für Abschnitt 1 (HÜB 5-35 mm)7	75
Abb. 4-22 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 50 Hz in zehn Phasen, mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 1	
(HÜB 5-35 mm)	76
Abb. 4-23 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 100 Hz in zehn Phasen, mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer) für Abschnitt 1	
(HÜB 5-35 mm)	77
Abb. 4-24 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 350 Hz, in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2,85 ms Periodendauer) für Abschnitt 1 	
(HÜB 5-35 mm)	78
Abb. 4-25 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, ohne Anregung der Strömung für Abschnitt 2	
(HUB 35-65 mm)	79
Abb. 4-26 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 50 Hz in zehn Phasen, mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 2 	
(HÜB 35-65 mm)	30

Abb. 4-27 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer) für Abschnitt 2	
(HÜB 35-65 mm)	81
Abb. 4-28 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer) für Abschnitt 2	
(HÜB 35-65 mm)	82
Abb. 4-29 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, ohne Anregung der Strömung für Abschnitt	3
(HÜB 65-102 mm)	83
Abb. 4-30 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 50 Hz in zehn Phasen mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 3	
(HÜB 65-102 mm)	85
Abb. 4-31 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer), für Abschnitt 3	
(HÜB 65-102 mm)	86
Abb. 4-32 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung	
mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer), für Abschnitt 3	3
(HÜB 65-102 mm)	87
Abb. 4-33 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfrequenz	
für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	88
Abb. 4-34 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfreguenz	
für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	89
Abb. 4-35 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfrequenz	
für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	90
Abb. 4-36 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfreguenz	
für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	91
Abb. 4-37 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfreguenz	
für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	92
Abb. 4-38 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfrequenz	
für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	93
Abb. 4-39 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfreguenz	
für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	94
Abb. 4-40 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfrequenz	
für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	95
Abb. 4-41 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfrequenz	
für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	96
Abb. 4-42 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 350 Hz Anregungsfreguenz	
für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	97
Abb. 4-43 Phasenkorreliertes axiales Geschwindiakeitsfeld bei 350 Hz Anreaunasfreauenz	
für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	98
Abb. 4-44 Phasenkorreliertes axiales Geschwindiakeitsfeld bei 350 Hz Anreaunasfreauenz	
für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone)	99
Abb. 4-45 Radiale aemittelte Geschwindiakeitsprofile der axialen Geschwindiakeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm. 30 mm und 60 mm) in der reaaierenden Strömung	
bei 0 Hz Anregung	. 100

Abb. 4-46 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HUB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 50 Hz Anregung	101
Abb. 4-47 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 100 Hz Anregung	102
Abb. 4-48 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 350 Hz Anregung	103
Abb. 4-49 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 0 Hz Anregung	104
Abb. 4-50 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 50 Hz Anregung	105
Abb. 4-51 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 100 Hz Anregung	106
Abb. 4-52 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente	
für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung	
bei 350 Hz Anregung.	107
Abb. 4-53 Integrales OH*-Chemolumineszenzfeld ohne Anregung der Strömung	108
Abb. 4-54 Integrales OH*-Chemolumineszenzfeld bei 50 Hz Anregung der Strömung,	
phasenkorreliert mit 2 ms Zeitschritt	110
, Abb. 4-55 Integrales OH*-Chemolumineszenzfeld bei 100 Hz Anregung der Strömung,	
phasenkorreliert mit 1 ms Zeitschritt.	111
Abb. 4-56 Integrales OH*-Chemolumineszenzfeld bei 350 Hz Anregung der Strömung.	
phasenkorreliert mit 285 us Zeitschritt	112
Abb. 4-57 Interpoliertes mittleres Temperaturfeld ohne und mit einer akustischen Anreauna der	
Strömung bei 50 Hz. 100 Hz und 350 Hz.	113
Abb. 4-58 Radiales Temperaturprofil ohne und mit Anreauna der Strömuna für	
$H\ddot{U}B = 18 \text{ mm} 32 \text{ mm} \text{ und } 46 \text{ mm}$	114
Abb 4-59 Radiales Temperaturprofil ohne und mit Anreauna der Strömuna für	
$H\ddot{B} = 60 \text{ mm} 74 \text{ mm} \text{ und } 88 \text{ mm}$	116
Abb 4-60 Radiales Temperaturnrofil obne und mit Anreauna der Strömung für	110
$H\ddot{D}B = 102 \text{ mm}$	117
Abb 4-61 Mittels Zwei Farben-zeitaufaelösten-III ermitteltes mittleres normiertes	,
Rußvolumenbruchfeld (f.) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-	
vorgemischten Drallflamme	120
Abb. 4-62 Mittels Zwoi Earbon-zeitaufaelösten-III ermitteltes mittleres normiertes	120
Rußvolumenbruchfeld (f.) unter Anroquing mit helber Amplitude (für EO Uz) in siner	
turbulantan nicht vorgamischtan Drallflamma	171
Abb. 4.62 Mittals Zwai Earban zaitaufaalästan III armittalta Standardahuvaiahuva das	121
Abb. 4-05 Willels Zwei Fulben-zeilaufgelösten-Lit enmittelle Standardubweichung des	
Rujsvolumenbruchs unter Anregung der Stromung in einer turbulenten	422
riicht-vorgemischten Draiiflämme	122

Abb. 4-64 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm)	
unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme	. 123
Abb. 4-65 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte mittlere normierte Anzahldichte (NT)	
unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme	. 124
Abb. 4-66 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter	
Ru $\beta$ volumenbruch ( $f_{ m V}$ ) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-	
vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 46 mm und HÜB = 60 mm	. 125
Abb. 4-67 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter	
Ru $\beta$ volumenbruch ( $f_{v}$ ) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-	
vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 74 mm und HÜB = 88 mm	. 126
Abb. 4-68 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter	
Rußvolumenbruch (f <sub>v</sub> ) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-	
vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 102 mm	. 127
Abb. 4-69 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm)	
unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme	
auf HÜB = 46 mm und HÜB = 60 mm	. 128
Abb. 4-70 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm)	
unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme	
auf HÜB = 74 mm und HÜB = 88 mm	. 129
Abb. 4-71 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm)	
unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme	
auf HÜB = 102 mm	. 130
Abb. 4-72 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Naphthalin auf der Düsenachse unter	
Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 131
Abb. 4-73 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Acenaphthalin auf der Düsenachse	
unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 133
Abb. 4-74 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Indan auf der Düsenachse unter	
Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 135
Abb. 4-75 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Inden auf der Düsenachse unter	
Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 136
Abb. 4-76 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Pyren auf der Düsenachse unter	
Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 137
Abb. 4-77 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Benzo[ghi]-fluoranthen auf der	
Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 138
Abb. 4-78 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Cyclopenta[cd]pyren auf der	
Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung)	. 139

# Symbol- und Abkürzungsverzeichnis

### Lateinische Großbuchstaben

А	Fläche [m²]	
---	-------------	--

A<sub>abs</sub> Massenabsorptionsquerschnitt [m<sup>2</sup>/g]

- A<sub>ext</sub> Massenextinktionsquerschnitt [m<sup>2</sup>/g]
- Astr Massenstreuquerschnitt [m<sup>2</sup>/g)]
- C Massenkonzentration [g/m<sup>3</sup>]
- C<sub>abs</sub> Absorptionsquerschnitt [m<sup>2</sup>]
- Cext teilchengrößenabhängiger Extinktionsquerschnitt [m<sup>2</sup>]
- $\overline{C}_{ext}$  mittlerer Extinktionsquerschnitt [m<sup>2</sup>]
- C<sub>sca</sub> integraler Streuquerschnitt [m<sup>2</sup>]
- D Diffusionskoeffizient [m<sup>2</sup>/s]
- E<sub>a</sub> Aktivierungsenergie [J/mol]
- E(m) Stoffspezifische Absorptionsfunktion [-]
- I Spektrale Strahlungsintensität pro Wellenlängeneinheit [W/m<sup>3</sup>]
- K<sub>cal</sub> Kalibrierkonstante [-]
- K<sub>sca</sub> Streukoeffizient [1/m]
- K<sub>sca,ref</sub> Streukoeffizient von Luft [1/m]
- K<sub>ext</sub> Extinktionskoeffizient [1/m]
- L Optische Weglänge Extinktion [m]
- $L_{\lambda}$  spektrale spezifische Strahlungsdichte realer Strahler [W/(sr·cm<sup>-1</sup>·m<sup>3</sup>)]
- $L_{\lambda,s}$  spektrale spezifische Strahlungsdichte schwarzer Strahler [W/(sr·cm<sup>-1</sup>·m<sup>3</sup>)]
- M<sub>1,2</sub> Molmasse Stoff 1 oder 2 [kg/kmol]
- N<sub>A</sub> Avogadrosche Konstante N<sub>A</sub> = 6,02214·10<sup>23</sup> mol<sup>-1</sup>
- N<sub>T</sub> Teilchenzahldichte [1/m<sup>3</sup>] oder [1/cm<sup>3</sup>]
- $Q_{abs}$  Wirkungsfaktor der Absorption  $Q_{abs} = C_{abs}/(\pi \cdot r^2)$
- $Q_{ext}$  Wirkungsfaktor der Extinktion  $Q_{ext} = C_{ext}/(\pi \cdot r^2)$
- $Q_{sca}$  Wirkungsfaktor der Streuung  $Q_{sca} = C_{sca}/(\pi r^2)$
- P Druck [Pa] 1 Pa =  $1 \text{ N/m}^2$
- R molare Gaskonstante R = 8,3144 J/(mol·K)

- S Drallzahl [-]
- S<sub>L</sub> Laminare Brenngeschwindigkeit [m/s]
- ST Turbulente Brenngeschwindigkeit [m/s]
- T Temperatur [K]
- V Volumen [m<sup>3</sup>]
- $\bar{V}_{Y,ph}$  phasenkorrelierte gemittelte axiale Geschwindigkeit
- Xi Molenbruch der chemischen Substanz i [-]

#### Lateinische Kleinbuchstaben

- a Temperaturleitfähigkeit [m<sup>2</sup>/s]
- an, bn Mie-Koeffizienten (Streukoeffizienten) [-]
- c Lichtgeschwindigkeit c = 299792458 m/s
- c<sub>mol</sub> Stoffmengenkonzentration [mol/m<sup>3</sup>]
- c<sub>P</sub> Wärmekapazität bei konstantem Druck [J/K]
- c<sub>p,s</sub> spezifische Wärmekapazität von Kohlenstoff c<sub>p,s</sub> = 1900 J/(kg·K)
- cv Wärmekapazität bei konstantem Volumen [J/K]
- dkorr Korrekturfaktor für die Extinktion [-]
- e Eulersche Zahl e = 2,718281828
- f Freiheitsgrade der Moleküle [-]
- fv Rußvolumenbruch [-]
- h Plancksches Wirkungsquantum h =  $6,62606876 \cdot 10^{-34}$  J·s
- $k_B$  Boltzmannkonstante  $k_B = 1,38065 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$
- m Komplexe Brechungsindex Flammenruß m = 1,73 0,6i
- n Stoffmenge [mol]
- n Stoffstrom [mol/s]
- p(r) Partikelgrößenverteilung [-]

- q Laserintensität [W/m<sup>2</sup>]
- r Radius eines kugelförmigen Teilchens [m]
- <sup>r</sup><sub>m</sub> Medianwert des Teilchenradius [m] oder [nm]
- t Zeit [s]
- v Strömungsgeschwindigkeit [m/s]
- u, v, w Strömungsgeschwindigkeit in x-, y- und z- Richtung [m/s]
- x Ortskoordinate [m]

#### Griechische Buchstaben

- α<sub>m</sub> Akkomodationskoeffizient (Massen) [-]
- $\alpha_T$  Akkomodationskoeffizient (Thermisch) [-]
- β Absorptionskoeffizient [1/m]
- $\gamma$  Adiabatenexponent/Isentropenexponent  $\gamma = C_P/C_V[-]$
- δ Dicke einer (Grenz-) Schicht [m]
- ε Emissionskoeffizient [1/m]
- θ Streuwinkel [-]
- λ Wellenlänge des Lichts [m]
- $\lambda_Q$  Wärmeleitfähigkeit in [W/(m · K)]
- μ Dynamische Viskosität [Pa.s]
- π Kreiszahl π = 3,141592654
- ρ<sub>s</sub> Dichte [kg/m<sup>3</sup>]
- σ Standardabweichung der logarithmischen Normalverteilung [-]
- $\sigma_{f_V}$  Standardabweichung vom Rußvolumenbruch [-]
- $\sigma_{Mess}$  Standardabweichung der Messung [-]
- $\sigma_{SB}$  Stefan- Boltzmann- Konstante  $\sigma_{SB} = 5,6704 \cdot 10^{-8} \text{ W/(m}^2 \cdot \text{K}^4)$
- τ Belichtungszeit der Kamera [s]

- τ<sub>L</sub> Turbulentes Zeitmaß (Large Eddy turnover Time) [s]
- $\tau_F$  Zeitmaß der Wärmefreisetzung [s]
- $\chi^2$  Gewichtete Fehlerquadratsumme [-]
- Ω Raumwinkel [str]

#### Abkürzungen

ÄRZ	Äußere Rezirkulationszone
GC/MS	Gaschromatograph/Massenspektrometer
HÜB	Höhe über Brenner
ICCD	intensified charge-coupled device
IRZ	Innere Rezirkulationszone
LII	laserinduzierte Inkandeszenz
FWHM	full width half maximum: Halbwertsbreite
Nd:YAG	Neodym dotierter Yttrium-Aluminium-Granat
NOC	nano organic carbon (Rußvorläufer)
РАН	polycyclic aromatic hydrocarbon
РАК	polyzyklischer, aromatischer Kohlenwasserstoff
PIV	Particle Image Velocimetry
PNP	precursor nanoparticles (Rußvorläufer)
ppm	parts per million
Q-Switch	Güteschalter des Laserresonators (quality- switch)
RQL	Rich Burn-Quick Quench-Lean Burn
SMPS	scanning mobility particle sizer
TR	time resolved (zeitaufgelöst)

## 1 Einleitung

Die Verbrennung ist eine der ältesten der Menschheit bekannten Technologien und hat über die Jahrhunderte nicht an Bedeutung verloren. Elektrische Energie wird aktuell überwiegend in Wärmekraftanlagen gewonnen (Abb. 1-1 (1)). Auch wenn der Anteil erneuerbarer Energiequellen in den letzten Jahren deutlich steigt (Stromerzeugung aus erneuerbaren Quellen 224.8 TWh daraus Windkraft 17.3% im Jahr 2018 und 244.3 TWh daraus Windkraft 24.5% im Jahr 2019), ist die Verbrennung fossiler Energieträger für die weltweite Energiebereitstellung weiterhin unentbehrlich. Auf die Verbrennung als Energiequelle verlässt sich neben der Energiebranche auch das Transportwesen. Momentan finden in der Luftfahrt ausschließlich flüssige Brennstoffe Verwendung. In naher Zukunft ist eine Änderung voraussichtlich nicht zu erwarten.

Bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe werden mit dem Abgas neben den Hauptprodukten der Verbrennungsreaktion (Kohlendioxid und Wasser) auch geringe Mengen von Nebenprodukten ausgestoßen, die negative Auswirkungen auf Umwelt und Mensch haben. Diese Emissionen werden als Schadstoffe bezeichnet und zählen zu den negativen Aspekten dieser Technologie. Kohlenmonoxid CO, Schwefeldioxid SO<sub>2</sub>, unverbrannte Kohlenwasserstoffe, Stickoxide (NOx) und nicht zuletzt Ruß gehören zu den bekanntesten anfallenden Schadstoffen. Weitere Forschung zum besseren Verständnis der Verbrennung ist von großer Notwendigkeit. Dies wird uns schließlich effizientere Verbrennungsprozesse (Kostenoptimierung und Umweltschutz) bieten, die absolut unabdingbar für die Deckung des Energiebedarfs künftiger Generationen werden.



Abb. 1-1 Bruttostromerzeugung in Deutschland 2018: insgesamt: 647 TWh [1].

Zu den wichtigsten Schadstoffen der Verbrennung gehört der Ruß, der als Zwischenprodukt unvollständiger Verbrennung, vor dem Verlassen der Brennkammer völlig oxidiert werden sollte. Die Rußbildung in technisch relevanten Verbrennungssystemen, z.B. Gasturbinen, Flugzeugtriebwerken, die durch hohe Turbulenz bzw. Instationarität charakterisiert werden, ist immer noch eine enorme Herausforderung bei der Verbrennungsmodellierung [2, 3, 5, 10, 24, 50]. Die komplexe Interaktion zwischen Chemie und Turbulenz solcher Systeme wirft viele Fragen auf. Ein tieferes Verständnis der physikalisch/chemischen Prozesse bei der Rußbildung ist unabdingbar auf dem Weg zur erfolgreichen Modellierung turbulenter Verbrennung [82, 86, 89, 91, 93, 124].

Zwecks einer Reduktion der Schadstoffemissionen, wie z.B. NOx, wird in modernen Gasturbinenanlagen eine Reihe von Verbrennungskonzepten vorgeschlagen/realisiert. Die Fett-Mager-Verbrennungsführung (engl. <u>R</u>ich Burn-Quick <u>Q</u>uench-<u>L</u>ean Burn, **RQL**) wird in teils vorgemischten oder Diffusionsflammen realisiert. Durch die Vermeidung stöchiometrischer Bedingungen werden die Verbrennungstemperaturen gesenkt und folglich die Bildung von thermischem NOx- inhibiert. Solche Verbrennungsbedingungen sind von Rußbildung begleitet [2, 3]. Die während der brennstoffreichen difusionskontrollierten Verbrennungsphase gebildeten Rußpartikeln sind in der anschließenden mageren Verbrennungsphase vollständig zu oxidieren, sodass die Emission von Ruß mit dem Abgas vermieden wird. Unter den instationären Betriebsbedingungen, die in einer Gasturbine herrschen, können Strömungsinstabillitäten vorkommen, die wiederum als Quelle von Verbrennungsinstabillitäten oder Verbrennungsoszillationen betrachtet werden können. Diese Oszillationen stellen eine zusätzliche Herausforderung auf dem Weg zur Vorhersage von Rußemissionen aus Gasturbinen dar.

In den letzten Jahrzehnten ist ein signifikanter Fortschritt in der Entwicklung und Validierung von Rußmodellen erreicht worden. Trotzdem ist das Verständnis der Rußbildungs- und Oxidationsprozesse vor allem unter hochturbulenten gasturbinen-ähnlichen Bedingungen weiterhin unvollständig [2-4]. Beim Auftreten von Verbrennungsoszillationen wird die Situation noch komplizierter. Der Einfluss der Verbrennungsinstabillitäten auf die Bildung und Oxidation von Ruß ist mehr oder weniger unbekannt/unerforscht. Eine genaue Vorhersage der Rußemissionen wäre unter solchen Bedingungen nicht möglich. In der Literatur wird von Untersuchungen über den Einfluss von angeregten Strömungsoszillationen auf laminare und turbulente Flammen berichtet [5-7]. Die Mehrheit der existierenden Literatur zur Flammen-Antwort auf die Oszillationen untersucht jedoch nicht den Einfluss auf die Rußbildung und -oxidation.

Im Rahmen dieser Arbeit, deren Struktur in Abb. 1-2 dargestellt ist, werden technisch relevante Verbrennungsprozesse unter turbulenten Bedingungen in Bezug auf Rußbildung- und Oxidation mittels einer berührungslosen laseroptischen Messmethode untersucht. Einer Reihe experimenteller Methoden werden zur Charakterisierung von Temperatur-, OH\* -Chemolumineszenz- und Geschwindigkeitsfelder, sowie von Rußvorläufermolekülen eingesetzt. Zu einer tiefgehenden Erforschung der genannten Problematiken wird ein modularer Gasturbinen-Modelbrenner (RQL Konzept) zur Verbrennung gasförmiger Brennstoffe konstruiert und gebaut.

Die Oszillationen werden mit vier Lautsprechern, die an die Luftkanäle des **RQL**-Modelbrenners montiert sind, realisiert. Als Brennstoff wird eine Erdgas/Ethylen-Mischung eingesetzt und in einer ersten Stufe unter brennstoffreichen Bedingungen oxidiert. In der zweiten Verbrennungsstufe wird die Oxidation der restlichen Kohlenwasserstoffe, CO und Ruß ermöglicht (*RQL*-Konzept). Zur Rußdetektion und Bestimmung der Rußpartikelgrößenverteilungen in hochturbulenten nicht vorgemischten Drallflammen unter Anregung der Strömung wird eine *non-intrusive*  laseroptische Messmethode (2 - Farben zeitaufgelöste laserinduzierte Inkandeszenz) eingesetzt [8]. Diese Untersuchungen sind mit integralen OH\*-Chemolumineszenz-, Geschwindigkeitsfeld-(High-Speed PIV) und Temperaturfeldmessungen kombiniert. Mittels Probenahme aus der Brennkammer und anschließender GC/MS-Analyse werden wichtige Rußvorläufermoleküle detektiert.



Abb. 1-2 Struktur der vorliegenden Arbeit.

Die Analyse und Interpretation der Ergebnisse soll tiefere Einblicke in den Prozessen der Rußbildung- und Oxidation in turbulenten drallstabilisierten Flammen mit und ohne Auftreten von thermoakustischen Instabilitäten ermöglichen. Die Hauptziele dieser Arbeit sind die experimentelle Untersuchung:

- der Reaktion nicht vorgemischter turbulenten Drallflammen auf akustische Störungen bei einer Reihe von Anregungsfrequenzen (0-350 Hz) und - des Einflusses von angeregten Geschwindigkeitsschwankungen auf die Bildung und Oxidation von Ruß und Rußvorläufermoleküle,

im Hinblick auf ein besseres Verständnis der Prozesse und Zusammenhänge beim Auftreten von Verbrennungsinstabilitäten. Diese Untersuchungen unterstützen die Weiterentwicklung der Rußvorhersagemodelle unter Berücksichtigung thermoakustischer Phänomene und somit leisten einen wichtigen Beitrag zur genaueren Vorhersage der Schadstoffemissionen von technischen Verbrennungsanlagen- ein hochaktuelles Thema beim Klimaschutz. Die Arbeit bezweckt dazu die Erschaffung einer soliden Datenbank zur Ruß-Modelvalidierung, die über qualitative und quantitative Informationen, wie Rußkonzentration-, Größe-, und Anzahldichte, sowie Temperatur- und Geschwindigkeitsverteilung in der Brennkammer inkl. chemische Analyse der Spezies (Rußvorläufer Moleküle und Verbrennungsreaktion-Indikatoren wie OH\* - Radikale) verfügt.

## 2 Theoretische Grundlagen

In diesem Abschnitt werden die theoretischen Hintergründe der Verbrennung von fossilen Brennstoffen und die Rußentstehung kurz dargestellt. Dabei wird zunächst auf die Hauptbegriffe bei den Verbrennungsprozessen inkl. Prinzipien der Stabilisierung von turbulenten Flammen, dimensionslosen Kennzahlen, Verbrennungsstrategien zur Reduktion der Schadstoffemission und Verbrennungsinstabilitäten näher eingegangen. Im Anschluss werden die theoretischen Grundlagen zu den komplexen Prozessen der Rußbildung mit den dazugehörigen physikalisch – chemischen Mechanismen dargestellt.

## 2.1 Grundlagen der Verbrennung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Rußbildung und Oxidation in turbulenten nicht vorgemischten Drallflammen und Verbrennungsinstabilitäten. Damit man die Ergebnisse und die daraus abgeleiteten Schlußfolgerungen nachvollziehen kann, ist es notwendig zuerst die grundlegendsten theoretischen Zusammenhänge zur Verbrennung und Rußentstehung kurz zu erläutern. Unter Verbrennung wird die schnelle, sich selbst unterhaltende Oxidation von Brennstoffen unter Wärme- und Lichtabgabe verstanden. Die Endprodukte bei der vollständigen Verbrennung organischer Stoffe sind Kohlendioxid (CO<sub>2</sub>) und Wasser (H<sub>2</sub>O) bzw. bei der Verbrennung anderer Stoffe entstehen die jeweiligen Oxide. Die Aufgabe der Verbrennung besteht in der Energiewandlung. Dabei wird die gebundene chemische Energie in thermische Energie (Wärme) umgewandelt, die sich dann in mechanische Energie oder elektrische Energie umwandeln lässt [9].

Als Flamme wird das Gebiet bezeichnet, in dem schwerpunktmäßig die chemische Umsetzung stattfindet. Flammen variieren stark in ihrer Struktur, Form, Größe und Temperatur [9-17]. Abhängig von der Brennstoffart, vom Mischungskonzept, von der Art der Flammenstabilisierung, vom Brennstoff/Oxidationsmittel-Verhältnis, sowie von der Strömungsart (laminar oder turbulent) können verschiedene Flammentypen beobachtet werden. Wenn die Mischung von Brennstoff und Oxidator gleichzeitig mit der Verbrennung abläuft, wird von einer nicht vorgemischten Flamme gesprochen. Die in dieser Arbeit untersuchten Verbrennungssystemen sind durch solche Flammen charakterisiert. Das Verständnis laminarer nicht-vorgemischter Flammen bildet die Grundlage für die Behandlung der turbulenten nicht-vorgemischten Flammen. Wie schon erwähnt, werden solche Flammen auch als Diffusionsflammen bezeichnet, da die Diffusion von Brennstoff und Oxidationsmittel zur Flammenzone langsam und damit geschwindigkeitsbestimmend gegenüber der chemischen Reaktion ist. In solchen Verbrennungssystemen hängt der chemische Umsatz wesentlich vom Durchmischungsgrad ab [16]. In den nicht-vorgemischten Flammen herrschen Bedingungen, die die Rußentstehung begünstigen, z.B. hohe Temperatur- und Konzentrationsgradienten, die mit lokal überstöchiometrischen Gemischen verbunden sind. Im Falle einer Mischung vor der eigentlichen Verbrennung, handelt es sich um eine vorgemischte Flamme. Ein Zwischenstadium ist hier die teilvorgemischte Flamme. Bei einem Brennstoffüberschuss wird die Flamme als "fett" und bei einem Oxidationsmittelüberschuss als "mager" bezeichnet ("fette" oder "magere" Verbrennung). Die Zusammensetzung des brennbaren Gemisches ist eine der wichtigsten Kenngrößen für die Beschreibung von Verbrennungsprozessen. Je nach Gemischzusammensetzung wird zwischen stöchiometrischen, unter- oder überstöchiometrischen Gemischen unterschieden. Bei einem stöchiometrischen Gemisch ist genau so viel Oxidator vorhanden, wie für die komplette Umsetzung des Brennstoffes benötigt wird. Das chemische Gleichgewicht bei den Verbrennungsreaktionen liegt fast komplett auf der Seite der Produkte. Wenn die Luft annähernd als eine Mischung aus 21 % Sauerstoff und 79 %

Stickstoff angenommen wird, ergibt sich für die Verbrennung von Methan:

$$CH_4 + 2\left(O_2 + \frac{79}{21}N_2\right) \to CO_2 + 2H_2O + 7.52N_2$$
 2.1

Es ist ersichtlich, dass für die komplette Verbrennung von 1 Mol Methan 9,52 Mol Luft benötigt werden. Im Falle einer vollständigen Verbrennung entstehen 10,52 Mol Produkte.

Eine weit verbreitete Kenngröße in der Verbrennungstechnik, neben dem Luft-zu-Brennstoff-

Verhältnis (LBV) stellt die Luftzahl  $\lambda$  dar. Dabei handelt es sich um das Verhältnis des tatsächlichen Luftangebots zum stöchiometrischen Luftbedarf:





Bei einer stöchiometrischen Verbrennung ist die Luftzahl definitionsgemäß gleich eins. Die Luftzahl kleiner eins steht für eine Verbrennung unter Luftmangel und ein Luftüberschuss ist durch die Luftzahl größer als eins gekennzeichnet. Für die Untersuchung von Rußbildungs- und Oxidationsprozessen wird die Verbrennung in dieser Arbeit unter Luftmangel realisiert.

2.2

Ein wichtiges Brennstoffchrakteristikum stellen die Zündgrenzen (eine Funktion der Temperatur und der Konzentration) dar. Wenn die Zusammensetzung außerhalb der Zündgrenzen liegt, kann, unabhängig von der Stärke der Zündquelle, keine Verbrennungsreaktion stattfinden. Es wird zu wenig Energie durch die Verbrennung freigesetzt, um das Frischgasgemisch auf Zündtemperatur zu bringen - die Reaktion erlischt [9-17]. Wie bereits erwähnt, unterscheiden sich die Flammen auch nach der Strömmungsart - laminare und turbulente Flammen. In Abb. 2-1 wird eine laminare Flammenfront schematisch dargestellt. Von der linken Seite strömt das frische Luft-Brennstoff-Gemisch mit einer Geschwindigkeit U∞ auf die Flamme zu. Die Temperatur des kalten Frischgasgemisches steigt kontinuierlich, auf Grund des konduktiven Wärmestroms  $\dot{q}$  von den heißen Bereichen der Flamme (Temperaturgradient). Sobald die für den Brennstoff spezifische Zündtemperatur Tz erreicht ist, fängt die Reaktion zwischen Brennstoff und Oxidator an. Die freigesetzte Energie erhitzt die Reaktionsprodukte und erzeugt so den notwendigen Temperaturgradienten für die Konduktion. Durch das Vorheizen und die anschließende Wärmefreisetzung erhöht sich die Temperatur von anfangs T<sub>FG</sub> auf T<sub>AG</sub> (Verbrennungstemperatur). Der Abschnitt  $\delta$ , in dem der Temperaturanstieg typischerweise weniger als einen Millimeter breit erfolgt, entspricht einer häufig verwendeten Definition der Flammenfrontdicke. Die Flammenfront ist in zwei Bereiche unterteilt- Vorwärmzone  $\delta_V$ , der Bereich zwischen dem Eintritt von Frischgas und dem Zündpunkt und Reaktionszone  $\delta_R$ , der restliche Bereich. Durch Anpassen der Anströmgeschwindigkeit (Abb. 2-1) kann ein Zustand erreicht werden, bei dem die Flammenfront ortsfest bleibt. Die Flamme pflanzt sich in diesem Fall mit der Geschwindigkeit U<sub>∞</sub> in das frische Gasgemisch fort. Diese Geschwindigkeit wird laminare Brenngeschwindigkeit SL genannt. Wie schnell sich die Flamme ausbreiten kann, hängt unter anderem von der Zeit ab, die benötigt wird, um das Frischgas auf Zündtemperatur zu bringen, daher lässt sich durch Aufstellen der Energiebilanz die laminare Brenngeschwindigkeit errechnen. Die durch Wärmeleitung übertragene Energie ist gemäß dem Fourier-Gesetz proportional zum Temperaturgradienten dT/dt und zur Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches λ. Strömt das Frischgas mit der Geschwindigkeit  $U_{\infty}$  und der Dichte  $\rho_{\infty}$ normal zur Flammenfront, gilt für einen linearisierten Temperaturverlauf [16]:

$$\dot{M}_{\infty} \overline{C_P} \Delta T_V = \rho_{\infty} U_{\infty} A \overline{C_P} \Delta T_V = \bar{\lambda} A \frac{\Delta T_V}{\delta_V}$$
2.3

Eine Umformung dieser Gleichung liefert die laminare Brenngeschwindigkeit S<sub>L</sub>, die gleich der zur Flammenfront normalen Komponente der Anströmgeschwindigkeit  $U_{\infty}$  ist und damit umgekehrt proportional zum mittleren spezifischen Wärmekapazität  $\overline{C_P}$  und proportional zur mittleren thermischen Diffusivität  $\overline{a}$ :

$$S_L = U_{\infty} = \frac{\bar{\lambda}}{\rho_{\infty} \overline{C_P}} \frac{1}{\delta_V} = \frac{\bar{a}}{\delta_V}$$
 2.4

In der Vorwärmzone wird der aus der Reaktionszone stammende Wärmestrom  $\dot{q}$  weiter zum Frischgas transportiert ohne das Vorhandensein einer Energiequelle. In der Energiebilanz der

Vorwärmzone ist zu berücksichtigen, dass die Energie, die von der Reaktionszone aufgenommen wird, in der gleichen Höhe an das Frischgas abgegeben werden muss. Daraus ergibt sich:

$$\boldsymbol{\rho}_{\infty} \boldsymbol{U}_{\infty} \boldsymbol{A} \, \overline{\boldsymbol{C}_{P}} \, \Delta \boldsymbol{T}_{V} = \bar{\boldsymbol{\lambda}} \, \boldsymbol{A} \, \frac{\Delta \boldsymbol{T}_{R}}{\delta_{R}}$$
2.5

$$S_L = U_{\infty} = \frac{\overline{a}}{\delta_R} \frac{\Delta T_R}{\Delta T_V}$$
 2.6

$$\boldsymbol{\delta}_{\boldsymbol{R}} = \frac{\overline{a}}{S_L} \frac{\Delta T_R}{\Delta T_V}$$
 2.7

Die gesamte Flammenfrontdicke ergibt sich aus (2.4) und (2.7) zu

$$\boldsymbol{\delta} = \boldsymbol{\delta}_{V} + \boldsymbol{\delta}_{R} = \frac{\overline{a}}{S_{L}} \left( \mathbf{1} + \frac{\Delta T_{R}}{\Delta T_{V}} \right) = \frac{\overline{a}}{S_{L}} \frac{\Delta T}{\Delta T_{V}}$$
 2.8

mit  $\Delta T = \Delta T_R + \Delta T_V$ . Das Umformen der obigen Gleichung nach der laminaren Brenngeschwindigkeit liefert schließlich [18]:

$$S_L = \frac{\overline{a}}{\delta} \frac{\Delta T}{\Delta T_V} \sim \frac{\overline{a}}{\delta}$$
 2.9

Die laminare Brenngeschwindigkeit kann darüber hinaus durch ein charakteristisches Zeitmaß der Wärmefreisetzung  $\tau_F$  beschrieben werden. Dieses Zeitmaß ist als die Zeit zu interpretieren, die die Flamme benötigt, um eine Strecke entsprechend der Dicke der Flammenfront zurückzulegen:

$$\tau_F \sim \frac{\delta}{S_L}$$
 2.10

Unter Berücksichtigung von (2.9) und (2.10) ergibt sich letztendlich, dass die laminare Brenngeschwindigkeit proportional zur Wurzel des Verhältnisses zwischen der mittleren thermischen Diffusivität  $\bar{a}$  und dem charakteristischen Zeitmaß der Wärmefreisetzung  $\tau_F$  ist:

$$S_L \sim \sqrt{\frac{\overline{a}}{\tau_F}}$$
 2.11

Im Fokus der vorliegenden Arbeit steht die Rußentstehung in technisch relevanten Verbrennungssystemen. Aufgrund vieler Vorteile werden in der Praxis am häufigsten turbulente drallstabilisierte Flammen eingesetzt. Deshalb werden die Untersuchungen in dieser Arbeit an solchen Flammen durchgeführt. Der nächste Abschnitt gibt Einblicke in die turbulente Verbrennung und in die Flammenstabilisierung in technischen Verbrennungssystemen.

### 2.1.1 Turbulente drallstabilisierte Flammen

Turbulente Strömungen finden eine große Verbreitung in der Technik und der Natur. Die Turbulenz zeichnet sich durch stochastische Eigenschaften aus. Daher setzt die Arbeit mit turbulenten Vorgängen grundlegende Kenntnisse sowohl der Fluiddynamik als auch über statistische Auswertungsmethoden voraus.

Bei einer reibungsbehafteten laminaren Strömung bewegt sich das Fluid in unendlich dünnen zueinander parallelen Schichten, die unterschiedliche Geschwindigkeiten aufweisen. Wenn sich das Fluid in einem Rohr (Rohrströmung) ausbreitet, ist die Geschwindigkeit auf der Rohrachse



Abb. 2-2 Unterschiedliche Geschwindigkeitsprofile einer laminaren (durchgezogene Linie) und einer turbulenten (gestrichelte Linie) Strömung [18].

maximal und wird durch den viskosen Impulsaustausch zur Wand hin reduziert. Aufgrund der Haftbedingung wird die Geschwindigkeit an der Wand zu null (Abb. 2-2, [18]).

Eine Erhöhung der Fluidgeschwindigkeit führt zu einer Zunahme der destabilisierenden Trägheitskräfte im Vergleich zu den strömungsstabilisierenden viskosen Kräften. Das Verhältnis der beiden Kräfte zueinander bildet die dimensionslose Reynolds-Zahl:

$$Re = \frac{\rho \, U \, d}{\mu} = \frac{U \, d}{\nu} \tag{2.12}$$

Wird ein von der Geometrie abhängiger kritischer Wert für die Reynolds-Zahl überschritten, können kleinste Störungen einen laminar-turbulenten Umschlag in der Strömung einleiten. Der

kritische Wert liegt für Strömungen in Rohren bei etwa 2320. Wenn es sich um nicht kreisförmige Kanäle handelt, kann die Reynolds-Zahl mit dem hydraulischen Durchmesser ermittelt werden. Die exakte Bestimmung des hydraulischen Durchmessers ist in der Literatur [125] ausführlich beschrieben.

In der turbulenten Strömung sorgen Wirbel unterschiedlicher Größe für einen intensiven Stoff-, Energie- und Impulstransport. Auch der Austausch quer zur Strömungsrichtung wird dadurch intensiviert, u.a. durch die Wirkung der Magnus-Kraft, die je nach Drehrichtung der Wirbel zur starken Ablenkung der Wirbel in radialer Richtung führen kann [18]. Durch den intensiven Impulsaustausch werden Geschwindigkeitsgradienten abgebaut und das radiale Profil der axialen Geschwindigkeit wird im achsennahen Bereich im Vergleich zur laminaren Strömung wesentlich flacher. Aufgrund der Haftbedingung an der Wand wird in Wandnähe ein deutlich steileres axiales Geschwindigkeitsprofil beobachtet (Abb. 2-2).



Abb. 2-3 Darstellung von zwei exemplarischen Messungen des zeitlichen Verlaufs der Geschwindigkeit in einer turbulenten Strömung (18).

Im Vergleich zur laminaren Strömung wird die turbulente Strömung durch erhöhte Reibungsverluste charakterisiert, sodass höhere Energiezufuhr von außen benötigt wird. Wenn die Geschwindigkeit an einem beliebigen Punkt in einer turbulenten Strömung über längere Zeit gemessen wird, kann eine ständige Betrags- und Richtungsänderung festgestellt werden. Der Geschwindigkeitsverlauf sieht am selben Punkt zu einem anderen, späteren oder früheren Zeitpunkt vollkommen anders aus (Abb. 2-3). In einer stationären turbulenten Strömung schwankt die momentane Geschwindigkeit u(t) um einen imaginären Mittelwert U. Die sich in der Zeit ständig ändernde Differenz zwischen den beiden Geschwindigkeiten wird als Schwankungskomponente  $\tilde{u}$  bezeichnet:

$$\boldsymbol{u}(\boldsymbol{t}) = \boldsymbol{U} + \widetilde{\boldsymbol{u}}$$
 2.13

In der Literatur ist diese Art, schwankende Größen darzustellen, unter dem Namen Reynolds-Zerlegung bekannt. Durch die Integration des Messsignals u(t) über ein ausreichend langes Zeitintervall wird der Mittelwert U bestimmt:

$$U = \frac{1}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} u(t) dt$$
 2.14

Aus den Gleichungen (2.13) und (2.14) folgt, dass der Mittelwert der Schwankungskomponente gleich null sein muss ( $\overline{\tilde{u}} = 0$ ). Als Maß für die Turbulenzintensität einer Strömung dient die Standardabweichung der turbulenten Schwankungen (quadratischer Mittelwert), die sich nach der Formel berechnen lässt:

$$u' = \sqrt{\frac{1}{t_2 - t_1}} \int_{t_1}^{t_2} \widetilde{u}^2 \, dt$$
 2.15

Der mit der mittleren Geschwindigkeit der Strömung normierte quadratische Mittelwert ist unter dem Namen Turbulenzgrad bekannt:

$$T_U = \frac{1}{U} \sqrt{\frac{u^{\prime 2} + v^{\prime 2} + w^{\prime 2}}{3}}$$
 2.16

Die turbulente kinetische Energie wird in Analogie zur Kinematik von festen Körpern aus den quadratischen Mittelwerten der Geschwindigkeiten berechnet. Für alle drei Raumrichtungen ist die massenspezifische Energie wie folgt definiert:

$$k = \frac{1}{2}(u'^2 + v'^2 + w'^2)$$
 2.17

In einer turbulenten Strömung wird die Geschwindigkeitsschwankung durch dreidimensionale Wirbelstrukturen unterschiedlicher Größen hervorgerufen. Zu den wichtigsten Merkmalen einer turbulenten Strömung gehört die Größe der Wirbel. Die Wirbel in der turbulenten Strömung können jede beliebige Größe innerhalb eines Spektrums annehmen. Die großen Wirbel beziehen Energie direkt aus den auf den Geschwindigkeitsgradienten beruhenden Scherkräften in der Hauptströmung [18]. Kleinere Wirbel, die sich im Einflussbereich der größeren Turbulenzstrukturen befinden, werden von diesen mit Energie versorgt, die sie dann an noch kleinere Wirbel weitergeben. Um Energie aufnehmen und abgeben zu können, müssen die Wirbel den isotropen Zustand verlassen, da die Energie nur durch Wirbelstreckung zu übertragen ist [18]. Dabei hat die Hälfte der Deformation, die eine Wirbelklasse mit der Wellenzahl k erhält, ihren Ursprung in Wirbeln, die doppelt so groß sind (k/2). Die andere Hälfte stammt aus allen anderen größeren Wirbelklassen. Auf der anderen Seite werden 60 % der Energie, die die Wirbelklasse mit der Wellenzahl k abgibt, von Wirbeln, die halb so groß sind (2k), aufgenommen, und der Rest verteilt sich auf alle anderen darunterliegenden Klassen. In Analogie zu einer Wasserkaskade wird von einem Kaskadenprozess gesprochen [18]. Als Energiespektrum der turbulenten Strömung bezeichnet man die grafische Auftragung der in den einzelnen Wirbelklassen gespeicherten turbulenten kinetischen Energie E(k)dk gegenüber der Wellenzahl k (Abb. 2-4). Die Fläche unterhalb der Kurve entspricht der gesamten in den Wirbeln gespeicherten turbulenten kinetischen Energie k<sub>t</sub>:

$$k_t = \int_0^\infty E(k) \, dk \tag{2.18}$$







Abb. 2-5 Doppellogarithmische Auftragung des turbulenten Energiespektrums (20).

Die maximal mögliche Wirbelgröße I<sub>max</sub> wird durch die räumlichen Gegebenheiten des Systems limitiert, wobei Wirbelstrukturen in dieser Größe jedoch relativ selten vorkommen [19] und nur wenig zum gesamten Turbulenzniveau der Strömung beitragen. Die maximale kinetische Energie enthalten Wirbel mit einer etwas größeren Wellenzahl als I<sub>max</sub> [21]. Die mittlere Größe dieser sogenannten Energie tragenden Wirbel ist unter dem Namen integrales Längenmaß bekannt und wird mit I<sub>t</sub> gekennzeichnet [22]. Neben dem Bereich der Energie tragenden Wirbel der s.g. Produktionsbereich, befindet sich bei größeren Wellenzahlen der Übergangsbereich. Dieser Bereich vereint die Eigenschaften sowohl des Produktionsbereichs als auch des nachfolgend beschriebenen Dissipationsbereichs (Abb. 2-5). Im Übergangsbereich stehen die Wirbel nicht in direktem Energieaustausch mit der Hauptströmung, sondern beziehen ihre Energie aus den nächstgrößeren Wirbelklassen nach dem Kaskadenprinzip und geben sie praktisch ohne Dissipationsverluste an kleinere Wirbelstrukturen weiter (Abb. 2-4). Der Dissipationsbereich besteht aus den kleinsten Wirbeln, die aus Gründen der Drehimpulserhaltung eine sehr hohe Winkelgeschwindigkeit besitzen. In diesem Bereich wird die der Hauptströmung entzogene Energie durch Reibung in ungeordnete Molekularbewegung umgewandelt.

Die kleinsten im System vorhandenen Wirbel werden als Kolmogorov-Wirbel bezeichnet. Unter der Annahme, dass ihre Bewegung nur von der kinematischen Viskosität v und von der Dissipationsrate der kinetischen Energie  $\varepsilon$  beeinflusst wird, ist ihre Größe mittels Dimensionsanalyse bestimmbar [24]:

$$\boldsymbol{\eta} = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{4}}$$
 2.19

Der radiale Austausch von Impuls, Stoff und Energie (abgesehen von Strahlung) in laminaren Strömungen findet durch die Brownsche Molekularbewegung statt. Die Intensität dieses Transportes ist direkt proportional zu der mittleren freien Weglänge und zu der mittleren Geschwindigkeit der Moleküle. Da die unterschiedlichen Austauschvorgänge auf demselben Mechanismus beruhen, sind bei den meisten Gasen der Diffusionskoeffizient D, die kinematische Viskosität v und die thermische Diffusivität *a* in der gleichen Größenordnung. Im Falle einer turbulenten Strömung sorgen die turbulenten Strukturen neben der molekularen Bewegung für einen intensiveren Austausch. Je nach Strömungsbedingungen kann der turbulente Austausch den molekularen um mehrere Größenordnungen übersteigen. In Analogie zur laminaren Strömung können den Wirbeln eine mittlere Weglänge - Wirbelgröße und eine Geschwindigkeit - Schwankungsgeschwindigkeit der Wirbel zugeordnet werden. Aufgrund der Analogie der Austauschprozesse unter laminaren und turbulenten Bedingungen kann die turbulente Reynolds-Zahl als ein Maß für die Intensivierung des Austausches durch turbulente Strukturen eingeführt werden:

$$Re_t = \frac{u'l_t}{v}$$
 2.20

Als Längenmaß zur Charakterisierung der mittleren Weglänge wird das integrale Längenmaß I<sub>t</sub> eingesetzt, das durch die Grenzen des Systems, wie etwa Durchmesser eines Rohres, festgelegt wird.

Die Anforderungen an die modernen Verbrennungssysteme werden immer größer. Es wird eine permanente Steigerung der Effizienz der Maschine angestrebt, ohne jedoch auf die kompakte Bauweise verzichten zu müssen. Wenn die Brennkammer zu kurz ist, wird ein kompletter Ausbrand des Brennstoffes nicht erreicht bzw. Produkte der unvollständigen Verbrennung, wie z.B. Ruß, können mit den Abgasen in die Atmosphäre gelangen. Bei der schnellen Umsetzung des zugeführten Brennstoffs spielt die Brenngeschwindigkeit eine entscheidende Rolle. Die laminare Brenngeschwindigkeit gängiger Brennstoffe auf Kohlenwasserstoffbasis liegt allerdings bei ca. 40 cm/s [25]. Die turbulente Brenngeschwindigkeit liegt üblicherweise deutlich höher als die laminare Brenngeschwindigkeit, was zu einer entscheidenden Verkürzung der Brennkammerlänge führt. Die turbulente Brenngeschwindigkeit wird, im Gegensatz zur laminaren Brenngeschwindigkeit abhängig von dem thermodynamischen Zustand und der Zusammensetzung des Gemisches, auch vom Strömungszustand beeinflusst. Die Turbulenz bewirkt eine Erhöhung der Brenngeschwindigkeit, indem sie die volumetrisch bezogene Umsatzrate von Brennstoff steigert. Das kann sowohl durch Erhöhung der Oberfläche der Flammenfront als auch durch Intensivierung der Austauschprozesse in der Flamme geschehen [18]. Im ersten Fall sind die kleinsten in der Strömung vorhandenen Wirbel, das Kolmogorov-Längenmaß n größer als die Dicke der Flammenfront δ. Die Turbulenzstrukturen verformen die Flammenfront (gewellte Flammen), ohne in sie einzudringen. Diese Flammen treten vor allem bei dünnen Flammenfrontdicken und/oder relativ großen Kolmogorov-Wirbeln auf. Die laminare Brenngeschwindigkeit der gewellten Flamme ändert sich, im Vergleich zu der ebenen Flamme abgesehen von Krümmungs- und Streckungseffekten, nicht. Durch die erhöhte Oberfläche aber wird die volumetrisch bezogene Umsatzrate der Flamme größer. Eine Verdopplung der Oberfläche führt eine verdoppelte Umsatzrate mit sich. Eine Beziehung für die turbulente Brenngeschwindigkeit von gewellten Flammen kann aus der Proportionalität zwischen Strömungsgeschwindigkeit und Flammenfrontoberfläche hergeleitet werden. In diesem Fall tritt die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit an der Stelle der Düsenaustrittsgeschwindigkeit auf [26]:

$$\frac{S_T}{S_L} = \frac{A_T}{A_L} = \frac{A_L + \Delta A}{A_L} = \mathbf{1} + \frac{\Delta A}{A_L} = \mathbf{1} + \frac{u'}{S_L}$$
2.21

$$S_T = S_L + u'$$

Als Faltungsmaß wird das Verhältnis der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit u<sup>′</sup> zu der laminaren Brenngeschwindigkeit S<sub>L</sub> bezeichnet. Es gibt Auskunft darüber, wie stark die Oberfläche der Flammenfront aufgrund der Faltung gewachsen ist. Nach Peters [27] kommt es durch die Wechselwirkung zwischen Wirbeln und Flammenfront und die dadurch bedingte Zufuhr von kaltem Gas in die Reaktionszone zum lokalen Verlöschen der Flamme. Dieser Bereich wird als Bereich der *aufgerissenen Flamme* bezeichnet. Wenn selbst größere Wirbel kleiner sind als die Flammenfrontdicke, oder wenn durch langsame chemische Reaktionen die Dicke der Flammenfront die Abmessungen der großen Wirbel erreicht hat, können mehrere Wirbelklassen in die Flammenfront eindringen und sie stark verdicken *- verdickten Flamme*. Um diesen Bereich einzugrenzen, wird eine neue dimensionslose Kennzahl, die Damköhler-Zahl, benötigt. Dabei handelt es sich um das Verhältnis von zwei charakteristischen Zeitmaßen, die Umdrehungszeit der großen Wirbel  $\tau_t$  und das charakteristische Zeitmaß der Wärmefreisetzung  $\tau_F$  (siehe Gleichung 2.10):

$$Da = \frac{\tau_t}{\tau_F} = \frac{\left(\frac{l_t}{u'}\right)}{\left(\frac{\delta}{S_L}\right)} = \frac{l_t}{\delta} \frac{S_L}{u'}$$
2.23

Damköhler-Zahlen größer als eins weisen entweder auf ein zu kurzes chemisches Zeitmaß  $\tau_F$  bzw. schnelle chemische Reaktion und dünne Flammenfront oder auf große Wirbel bzw. eine große Umdrehungszeit  $\tau_t$  hin. Eine verdickte Flammenfront kann bei einer Damköhler-Zahl kleiner als eins auftreten. Sie hat eine ähnliche Struktur wie eine laminare Flammenfront, allerdings findet aufgrund der Turbulenz im Inneren ein wesentlich intensiverer Austausch statt. In Anlehnung an die thermische Theorie laminarer Flammen lässt sich eine Beziehung für die turbulente Brenngeschwindigkeit in diesem Bereich aufstellen:

$$S_T \sim \sqrt{\frac{\overline{a}_t}{\tau_F}}$$
 2.24

wobei  $\bar{a}_t$  eine äquivalente turbulente thermische Diffusivität darstellt. Aus (2.11) und (2.24) ergibt sich:

$$\frac{S_T}{S_L} \sim \sqrt{\frac{\overline{a}_t}{\overline{a}}}$$
 2.25

Die äquivalente turbulente thermische Diffusivität kann als Produkt aus dem integralen Längenmaß It und der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit u' dargestellt werden. Mit einer Prandtl-Zahl von eins reduziert sich der obige Ausdruck zu der Wurzel der turbulenten Reynolds-Zahl:

$$\frac{S_T}{S_L} \sim \sqrt{\frac{\overline{a}_t}{\overline{a}}} \sim \sqrt{\frac{u'l_t}{\overline{a}}} = \sqrt{Re_t}$$
2.26

Beziehungen für die Bestimmung der turbulenten Brenngeschwindigkeit im Falle einer gewellten (2.21) und einer verdickten Flamme (2.26) wurden bereits abgeleitet. Für den Übergangsbereich kann die von Schmid [28] hergeleitete Beziehung angewendet werden:

$$\frac{S_T}{S_L} \sim 1 + \frac{u'}{S_L} (1 + Da^{-2})^{-\frac{1}{4}}$$
 2.27

Ein weiteres Thema von zentraler Bedeutung für technische Verbrennungssysteme stellt die Flammenstabilisierung dar. In solchen Verbrennungsanlagen z.B. thermische Wärmekraftmaschinen sind sehr hohe thermische Leistungen gefordert, die mit hohen Massendurchsätzen und somit auch hohen Strömungsgeschwindigkeiten verbunden sind. Damit eine stabile Verbrennung unter solchen Bedingungen gewährleistet werden kann, sind neben der Steigerung der Brenngeschwindigkeit durch Erhöhung der Turbulenzintensität noch weitere Maßnahmen notwendig. Eine Verbesserung der Flammenstabilität ergibt sich durch die Schaffung von Bereichen in der Brennkammer, die günstige Konditionen für eine stabile Verbrennung bieten. Dabei ist dafür zu sorgen, dass mittels der in der Flammenzone freigesetzten Energie das Luft-Brennstoff-Gemisch gezündet wird und somit das frühzeitige Abblasen der Flamme verhindert wird. Solche Bereiche sind durch ein kinematisches Gleichgewicht zwischen der zeitlich mittleren Strömungsgeschwindigkeit und der Brenngeschwindigkeit charakterisiert [29]. Diese Voraussetzung kann sowohl durch Verringern der lokalen Strömungsgeschwindigkeit als auch durch zusätzliches Erhöhen der Brenngeschwindigkeit erfüllt werden. Am häufigsten wird für diesen Zweck durch Anbringen von Staukörpern oder aerodynamisch eine Rezirkulationszone erzeugt (Abb. 2-6).





Im Grenzgebiet zwischen der Rezirkulationszone und der Hauptströmung kommen sehr hohe Geschwindigkeitsgradienten vor, die die Turbulenz entscheidend fördern. Aufgrund der hohen turbulenten Schwankungen nimmt die turbulente Brenngeschwindigkeit weiter zu. Die Rückströmung transportiert heiße Abgase (Energie) und freie Radikale zurück zum Düsenaustritt, wodurch das Zünden des Frischgases sichergestellt wird. Wenn für die Flammenstabilisierung ein Staukörper zum Einsatz kommt, ist die Strömungsablösung für die Entstehung des Rückströmgebiets verantwortlich [29]. Der höhere Druckverlust aufgrund der Versperrung des Querschnittes und die verkürzte Lebensdauer des Staukörpers infolge des direkten Kontakts mit den heißen Rauchgasen stellen die Hauptnachteile bei dieser Art der Stabilisierung dar.

In modernen Verbrennungsanlagen wird daher häufig auf eine aerodynamische Stabilisierung zurückgegriffen, indem die Eigenschaften von Drallströmungen zum Erzeugen eines Rückströmgebiets genutzt werden. Diese Art der Stabilisierung ist in der Praxis weit verbreitet, z.B. zur Stromerzeugung in stationären Gasturbinen oder im Flugverkehr als Flugtriebwerke. Die große

Bedeutung solcher Verbrennungsbedingungen aus wirtschaftlichen und Umweltschutzaspekten haben die Realisierung dieser Forschungsarbeit motiviert. Die Untersuchung der komplexen Interaktion zwischen Strömmung, Verbrennungsreaktionen und Schadstoffentstehung ist nur durch eine geeignete Aufteilung bzw. modulare Betrachtung der Hauptprozesse und Einflussfaktoren möglich. Die Art der Stabilisierung ist von großer Bedeutung für die Durchmischung und die Homogenität (Konzentration-, Temperatur-, Strömmungsgradienten) in der Brennkammer und folglich besonders wichtig für die Bildung von Rußbildungs- oder Rußoxidationszonen. Eine genauere theoretische Betrachtung der aerodynamischen Flammenstabilisierung ist für das Nachvollziehen der vorliegenden Untersuchungen unabdingbar. Es ist sinnvoll, die Betrachtungen in einem Zylinderkoordinatensystem mit dem axialen Abstand x, dem radialen Abstand r und dem Winkel θ (der Winkel auf der zur mittleren Achse x orthogonalen Kreisfläche) durchzuführen. Im Falle einer verdrallten Strömung rotiert ein Fluidelement um die Symmetrieachse mit der tangentialen Geschwindigkeit w. Die Lösung der Navier-Stokes-Gleichung liefert den radialen Verlauf der tangentialen Geschwindigkeit für eine inkompressible Strömung. Für den stationären Fall und unter der Voraussetzung von Reibungsfreiheit reduziert sich die Navier-Stokes-Gleichung in tangentialer Richtung zu der Eulerschen Differentialgleichung [31]:

$$\frac{\partial^2 w}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial w}{\partial r} - \frac{w}{r^2} = \mathbf{0}$$
 2.28

Das Profil der tangentialen Geschwindigkeit lässt sich für große Radien, auch für reelle Fluide, dank der niedrigen Scherung durch einen hyperbolisch abfallenden Potentialwirbel w(r) ~ 1/rgut wiedergeben. Da die tangentiale Geschwindigkeit in der Strömung umgekehrt proportional zum radialen Abstand zur Achse ansteigt, würde sie für kleinere Radien unendlich anwachsen müssen. Dies hätte sehr hohe Scherraten zur Folge. Rankine hat die Annahme getroffen, dass für kleinere Radien der Potentialwirbel in einen Festkörperwirbel w(r) ~ r übergeht und daher die tangentiale Geschwindigkeit zu kleineren Radien linear abnimmt. Auf der Achse erreicht



Abb. 2-7 Verlauf der tangentialen Geschwindigkeit (rot) und des statischen Druckes (blau) im Rankine-Wirbel ohne (durchgezogene Linie) und mit (gestrichelte Linie) einer Querschnittsveränderung (Düsenaustritt) [35].

diese den Wert null (Abb. 2-7). Die exakte Lösung der Navier-Stokes-Gleichungen ist unter dem Namen *Rankine-Wirbel* bekannt:

$$w(r) = w_1 \left(\frac{r}{r_1}\right)^m mit \begin{cases} m = 1, & 0 \le r < r_1 \\ -1 \le m \le 0, & r \ge r_1 \end{cases}$$
 2.29

In der Literatur findet man für den Potentialwirbel Werte für den Exponenten m zwischen -0,2 und -0,6 [32, 33]. Dieser Exponent ist von der Bauart des Drallerzeugers abhängig.

An der Stelle des Maximums der tangentialen Geschwindigkeit ( $w_1$ ) entsteht beim Rankine-Wirbel eine Unstetigkeit (Abb. 2-7). In einer Unterschallströmung können keine Unstetigkeitsstellen vorkommen. Dies wird zu einer Abweichung der Rankine-Wirbel vom reellen Wirbel führen. Eine exakte Lösung der Navier-Stokes-Gleichungen (von Hamel und Oseen), die keine Unstetigkeit aufweist [34], wird durch die folgende Gleichung gegeben:

$$w(r) = \frac{A}{r} \left( 1 - e^{\frac{r^2}{B}} \right)$$
 2.30

Ein sich im Wirbel entlang einer Kreisbahn mit der tangentialen Geschwindigkeit w bewegendes Volumenelement endlicher Masse erfährt eine Zentrifugalkraft in radialer Richtung. Damit dieses Element auf der Kreisbahn bleibt, muss auf es eine entgegengesetzte Kraft mit derselben Größe wirken. Bei einer Drallströmung erfüllt die Druckkraft diese Aufgabe. Hat das Volumenelement eine räumliche Ausdehnung in radialer Richtung von  $\partial r$ , kann die Kräftebilanz wie folgt aufgestellt werden [36]:

$$\rho \frac{w^2}{r} = \frac{\partial p}{\partial r}$$
 2.31

Das Auflösen der Gleichung (2.31) unter Berücksichtigung der Gleichung (2.29) liefert für die reibungsfreie Strömung im Bereich des Potentialwirbels gegenläufige Druck- und Geschwindigkeitsprofile, mit  $r_1$  Radius an der Grenze vom Festkörper- und Potentialwirbel (Abb. 2-7):

$$p(r) = p_1 + \frac{\rho}{2} \overline{w}_1^2 r_1^2 \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r^2}\right)$$
 2.32

Aus den Gleichungen (2.29) und (2.31) erhält man den entsprechenden Ausdruck für den statischen Druck im Festkörperwirbel:

$$p(r) = p_1 + \frac{\rho}{2} \frac{\overline{w}_1^2}{r_1^2} \left( r^2 - r_1^2 \right)$$
 2.33

Aus Gleichung (2.33) lässt sich der auf der Achse (r = 0) herrschende Unterdruck berechnen:

$$p_{r=0} = p_1 - \frac{\rho}{2} \overline{w}_1^2$$
 2.34

Bei einer Änderung des Strömungsquerschnitts der verdrallten Strömung z.B. Austreten der Strömung aus der Düse in die Brennkammer, weitet sich die rotierende Strömung unter der Wirkung der Zentrifugalkraft schnell in radialer Richtung aus. Dabei verlagern sich die Fluidelemente zu größeren Radien, sodass die Tangentialgeschwindigkeit und somit auch ihr maximaler Wert w<sub>1</sub> abnimmt (gestrichelte Kurven in Abb. 2-7). Wenn die Drallintensitäten weiter erhöht werden, kommt es zu einer Richtungsumkehr der axialen Geschwindigkeit- es entsteht eine Rezirkulationszone, die sich stromab wieder schließt (Abb. 2-8). Durch die Rückströmblase erfährt die Strömung ein zusätzliches Hindernis. Dadurch wird eine stärkere radiale Ausweitung hervorgerufen. Diese bewirkt eine weitere Abnahme der Tangentialgeschwindigkeit, erhöht den Druckgradienten auf der Achse und vergrößert dadurch die Rückströmzone noch mehr [31]. Zur Charakterisierung der Drallstärke einer verdrallten Strömung wird nach Jung der Winkel zwischen der axialen und tangentialen Geschwindigkeitskomponente verwendet [38]. Aufgrund der Änderung dieses Winkels sowohl in radialer als auch in axialer Richtung ist dieser Parameter ungeeignet. Ein weiterer Parameter wurde von Beer und Chigier eingeführt. Es handelt sich hierbei um die dimensionslose Drallzahl, die als Kennzahl für die Drallstärke verwendet wird [39].

Die Drallzahl *S* stellt das mit dem Austrittsradius der Düse *R* entdimensionierte Verhältnis des integralen Drehimpulsstroms  $\dot{D}$  zum integralen Axialimpulsstrom  $\dot{I}$  dar.

$$S = \frac{\dot{D}}{\dot{I}R}$$
 2.35

Wenn die Wandreibung vernachlässigt wird, kann für praktische Anwendungen die Drallzahl in zylindrischen Kanälen als eine Erhaltungsgröße betrachtet werden, da sowohl der Dreh- als auch der Axialimpulsstrom Erhaltungsgrößen sind [40]. Eine niedrige Drallzahl deutet auf einen



Abb. 2-8 Auftreten eines Rückströmgebiets beim Erhöhen der Drallzahl [37].

im Vergleich zum Drehimpulsstrom hohen Axialimpulsstrom hin, der die Bildung einer Rezirkulationszone verhindert. Erst beim Überschreiten einer kritischen Drallzahl kann sich eine Rückströmzone bilden. Die kritische Drallzahl liegt je nach Geometrie der Düse zwischen 0,4 und 1,0 [29].

Wenn die Gesamtströmung aus mehreren unterschiedlich stark, gleich- oder gegensinnig verdrallten Teilen zusammengesetzt ist, so lässt sich eine sogenannte Gesamtdrallzahl (nach Kerr und Fraser [41]) bestimmen:

$$S_{th,\Sigma} = \frac{\Sigma \dot{D}_{th,i}}{\Sigma I_{th,i}R}$$
36

20

Zwecks einer Reduktion von Schadstoffemissionen, wie z.B. NOx, werden in modernen Gasturbinenanlagen diverse Verbrennungskonzepte eingesetzt. Ein sehr verbreitetes Konzept ist die Fett-Mager-Verbrennung (engl. Rich Burn-Quick Quench-Lean Burn, RQL), die in teilvorgemischten oder Diffusionsflammen realisiert wird. Durch die Vermeidung stöchiometrischer Bedingungen werden die Verbrennungstemperaturen gesenkt und folglich die Bildung von thermischem NOx- inhibiert. Solche Verbrennungsbedingungen sind aber von Rußbildung begleitet und trotz der Fortschritte in den vergangenen Jahrzehnten immer noch nicht ausreichend verstanden [2, 3]. Die vorliegende Arbeit bezweckt die tiefgehende Untersuchung der Rußbildungund Oxidation in praxisnahen RQL-Verbrennungsanlagen, die eine wichtige Rolle in der Reduktion der Schadstoffemissionen, wie Rußpartikel und NOx, spielen können.

### 2.1.2 RQL-Verbrennungskonzept

Die Fett-Mager-Verbrennungsführung (<u>*R*</u>ich Burn-Quick <u>Q</u>uench-<u>L</u>ean Burn, **RQL**) basiert auf der stufenweisen Verbrennung zwecks einer Reduktion der NOx-Bildung in der Flamme (Abb. 2-9).



Abb. 2-9 Prinzip der Fett-Mager-Verbrennung nach Turns (26).

Die *RQL*-Brennkammer besteht aus zwei nacheinander angeordneten Verbrennungsstufen. Im ersten Schritt wird ein stark brennstoffreiches ( $\lambda$ <1) Gemisch verbrannt. Dadurch wird für eine stabile Verbrennung gesorgt, die zudem weit genug vom NOx-reichen (in der oberen Abb. 2-9) nahestöchiometrischen Bereich entfernt ist (die NOx-Konzentration (durchgezogene Linie) steigt von Punkt 0 auf Punkt 1 an). Anschließend werden die noch brennbaren Produkte im Abgas möglichst schnell mit zusätzlichem Oxidator (Sekundärluft) homogen vermischt. Es wird die schnelle Bildung eines mageren Gemisches bezweckt, noch bevor es aufgrund der hohen

Umgebungstemperatur zünden kann (Übergang Punkt 1 zu Punkt 2). In der zweiten Verbrennungsstufe wird der Brennstoff unter starkem Luftüberschuss oxidiert. Unter diesen "mageren" Bedingungen ( $\lambda$ >1) wird die Stickoxidbildung gehemmt (NOx-Anstieg von Punkt 2 auf Punkt 3).

Von entscheidender Bedeutung für die optimale Funktion dieses Konzeptes ist die schnelle Mischung der Produkte der brennstoffreichen Verbrennung mit der sekundären Luft. Wenn diese schnelle Mischung nicht realisiert wird, können stellenweise Bereiche stöchiometrischer Zusammensetzung entstehen bzw. eine Intensivierung der NOx-Bildung (Übergang von Punkt 1 nach Punkt 3'). Trotz der technisch schwer realisierbaren schnellen Mischung wird dieses Konzept in manchen modernen Fluggasturbinen zur NOx-Reduktion eingesetzt.

In technischen Verbrennungsanlagen können instabile Zustände auftreten, die einen negativen Einfluss auf die Verbrennungsführung, z.B. im Hinblick auf die Schadstoffbildung, Wärmefreisetzung, Druckschwankungen, erhöhten Verschleiß oder sogar Zerstörung der Anlage haben können. Der nächste Abschnitt stellt die theoretischen Grundlagen solcher Verbrennungsinstabilitäten dar. Trotz der wichtigen Stellung von Verbrennungsinstabilitäten in der Verbrennungstechnik und die langjährige Erforschung dieses Gebietes sind viele Fragen immer noch offen. Das Ziel zahlreicher Forschungsarbeiten, inklusive der vorliegenden Dissertation ist es, einen Beitrag zu der Beantwortung dieser Fragen zu leisten. Die Reaktion von nicht vorgemischten Drallflammen auf akustische Störungen und der Einfluss von Geschwindigkeitsschwankungen auf die Bildung und Oxidation von Ruß stellen die Schwerpunkte dieser Arbeit dar.

### 2.1.3 Verbrennungsinstabilitäten

Während der Verbrennungsprozesse entstehen akustische Schwingungen, die mit der Flamme interagieren. Breitband-Lärmemissionen von turbulenten Flammen sind ein wichtiges Forschungsthema, und in der Literatur sind zahlreiche Untersuchungen zu finden [42, 43-45, 46-49, 77]. Das Hauptziel ist es dabei, Methoden zu entwickeln, die das Vorhersagen oder die Identifizierung der wichtigsten Quellen des Verbrennungslärms ermöglichen.

Flamme-Akustik-Interaktionen stellen die starke Kopplung zwischen der Flamme und den akustischen Schwingungen dar. Als Folge können starke Druck-Wärmefreisetzungspulsationen entstehen, die als Verbrennungsinstabilitäten bezeichnet werden. Solche Instabilitäten können enorme Schäden, bis zur kompletten Zerstörung, in Verbrennungssystemen verursachen [50-51]. Über die Interaktion zwischen den Schwankungen der Wärmefreisetzung und des Druckes hat zuerst Rayleigh berichtet [52,53]. Basierend auf diesen Beobachtungen hat Putnam ein wichtiges Kriterium definiert, und zwar das Rayleigh-Kriterium [54]:

$$\int p'(t)q'(t) > 0 \qquad 2.37$$

Hier steht p'(t) für die Druckschwankungen und q'(t) für die Fluktuation der Wärmefreisetzung in der Reaktionszone. Das Integral über die Periode T des Instabilitätmodes ist positiv bei einem Phasenwinkel ≤ 90° zwischen den Wärmefreisetzungs- und den Druckoszillationen. Bei solchen
Bedingungen wird Energie von der Flamme dem akustischen Feld zugeführt. Auch bei einem positiven Wert des Integrals kommt es nicht zwingend zu einer Instabilität des Brenners. Die Dissipation der akustischen Energie innerhalb und/oder durch die Grenzen der Verbrennungsanlage wirkt sich dämpfend auf die thermoakustischen Oszillationen aus. Die Voraussetzung zur Erhaltung/Verstärkung der thermoakustischen Instabilität ist, dass die von der Flamme an das akustische Feld abgegebene Energie die akustischen Energieverluste übersteigt [122]:

$$\iint p'(x,t)q'(x,t)dtdV \ge \iint \sum_{i} L_{i}(x,t)dtdV \qquad 2.38$$

Hier stehen p'(x,t) und q'(x,t) für die Druck- und Wärmefreisetzungsoszillationen, V ist das Brennervolumen und  $L_i(x,t)$  bedeutet den i-ten Energieverlustprozess. Neben dem meistverbreiteten Rayleigh-Kriterium werden in der Literatur alternative und erweiterte Formulierungen diskutiert [55]. Zu Verbrennungsinstabilitäten kommt es in vielen verschiedenen Verbrennungssystemen, darunter Raketentriebwerke [56, 57], Flugtriebwerke [58, 59] und Gasturbinen [50, 60]. Dies deutet auf die Existenz einer großen Anzahl von Erregungsmechanismen hin, von denen vermutlich viele noch nicht bekannt sind. Eine detaillierte Diskussion der bekannten Erregungsmechanismen in Gasturbinenbrennkammern ist in [61] zu finden. Ducroix et al. beschreiben solche Mechanismen in Vormischflammen [62].

Eine Klassifizierung der Erregungsmechanismen, die zur Verbrennungsinstabilität führen, wird von Lieuwen und Zinn (63) vorgeschlagen:

#### Kopplung der Brennstoffzufuhr mit akustischen Oszillationen

Druckschwankungen in der Brennkammer führen zu Fluktuationen des Druckverlusts über die Brennstoffdüse. Der Brennstoffdurchfluss wird von dem Druckverlust beeinflusst und dementsprechend auch oszillieren. Als Folge sind Fluktuationen der Wärmefreisetzung zu erwarten. [64].

#### <u>Oszillationen der Luftzahl</u>

Druckschwankungen in der Brennkammer initiieren instationäre Mischungsprozesse d.h. Oxidator- und Brennstoffdurchfluss werden unterschiedlich stark von diesen Schwankungen beeinflusst. Dabei kommt es zur Fluktuation der Luftzahl und folglich der Wärmefreisetzung [65-67].

#### Periodische Schwankungen der Zerstäubung, Verdampfung und Mischung

Druckschwankungen in der Brennkammer führen zu Störungen der Spraybildung des Brennstoffs. Als Ergebnis dieser Störungen können periodische Veränderungen in der Tröpfchengröße, der Verdampfungs- und Mischungsrate des Brennstoffes mit den umgebenden Gasen entstehen. Diese Veränderungen können auch Oszillationen der Brennstoffzufuhr und der Luftzahl bzw. der Wärmefreisetzung verursachen [68].

#### Fluktuation der Flammenoberfläche

Akustische Geschwindigkeitsschwankungen führen zur Veränderung der Flammenoberfläche, was wiederum eine periodische Zunahme der Gesamtwärmefreisetzungsrate zur Folge haben kann [69].

#### Flamme-Wirbel Interaktion

In der Brennkammer können große kohärente Wirbelstrukturen, die aus brennbaren Gasen bestehen, beobachtet werden. In der Bildungsphase dieser Wirbelstrukturen werden Heißgase mitgeschleppt. Dabei verbrennt die reaktionsfähige Mischung im Inneren des Wirbels pulsartig unter der Bildung von kleinskaligen turbulenten Strukturen. Die Wirbelstrukturen können eine Verzerrung und folglich periodische Schwankungen der Flammenoberfläche (Fluktuation der Wärmefreisetzung) verursachen. Wenn die Wärmefreisetzung in einer Phase mit den Druckschwankungen oszilliert, werden massive Pulsationen beobachtet [70-77].

Verbrennungsinstabilitäten werden im Allgemeinen bei Frequenzen beobachtet, die mit den akustischen Eigenmoden der Brennerkomponenten verbunden werden können, z.B. Brennergeometrie, Düse, Luftzufuhrleitung, Brennstoffleitung, Brennkammer. Entlang der Eigenfrequenzreihe wird die Reaktion an akustischer Anregung erhöht. Dadurch können die Druck- und Wärmefreisetzungsschwankungen verstärkt werden. Die Vielzahl der Erregungsmechanismen zeigt erneut, wie komplex die Interaktion zwischen Verbrennung und Strömmung ist. Es ist immer noch kaum etwas über den Einfluß von Verbrennungsinstabilitäten auf die Schadstoffbildung bekannt. Dadurch ist die vorliegende Arbeit, die sich schwerpunktmäßig mit den Prozessen der Rußbildung und -oxidation in technischen Brennkammern unter Einwirkung von Verbrennungsinstabilitäten befasst, motiviert. Die Rußentstehung ist ein zentrales Forschungsthema in der Verbrennung und aufgund der hohen Komplexität und vielen Einflußfaktoren immer noch nicht vollständig verstanden. Der folgende Abschnitt ist den theoretischen Grundlagen auf dem Weg vom Brennstoffabbbau bis zur Rußemission aus der Verbrennungsanlage gewidmet.

## 2.2 Rußbildung in der Verbrennung

Im Allgemeinen wird unter Ruß eine schwarze, unerwünschte Feststoffemission aus Verbrennungsanlagen u.a. Heizkesseln, Industrieöfen, Kraftwerken oder Antriebsmaschinen z.B. Flugzeugturbinen und Dieselmotoren verstanden. Dabei zählen die Rußpartikeln (Partikelgröße von ca. 1nm bis 1µm) zu den ultrafeinen Partikeln, die in die Blutbahn von Lebewesen gelangen können. Auf der Rußpartikeloberfläche haften polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK's) an, die wesentlich zur gesundheitsschädlichen und potenziell krebserregenden Wirkung des Rußes beitragen. Die Rußpartikeln, die in die Atmosphäre gelangen, werden mit dem Klimawandel in Verbindung gebracht. Schwebepartikeln u.a. Ruß können zur Erwärmung der Atmosphäre direkt durch Absorption von Sonnenlicht- Albedo Effekt und indirekt durch den Einfluss auf die Wolkenbildung führen. Die Albedo ist ein Maß für die Helligkeit eines Körpers: je heller der Körper ist, desto größer ist die Albedo und umgekehrt je dunkler, schwarzer der Körper, desto kleiner ist der Albedo-Wert. Unsere Erde hat eine mittlere Albedo von ca. 0.3, d.h. 30 % der Sonnenstrahlung werden von der Erde reflektiert. In den hohen Breiten zu den Polen hin, wo viel Eis und Schnee liegen, ist sie deutlich höher als über Land und Wasserflächen in den mittleren und niederen Breiten. Durch die Anhaftung von Ruß auf dem Eis/Schneeoberfläche wird die Albedo verändert und somit eine Auswirkung auf dem Strahlungshaushalt der Atmosphäre. Dies hat eine Erwärmung zur Folge und trägt merklich zur globalen Klimaerwärmung bei [126]. Im Gegensatz dazu streuen andere Partikeln in der Atmosphäre z.B. Sulfate das Sonnenlicht, was zu einer globalen Abkühlung führen kann. In der Reduktion der Rußemission wird daher eine weitere Strategie gegen die globale Erwärmung gesehen neben der Reduzierung von CO<sub>2</sub> Emissionen [78-80]. Die Fokussierung auf die Rußemission wird wie folgt begründet:

- Ruß hat diverse Nachteile u.a. krebserregend und höhere Materialbelastung durch Strahlung, anders als die CO<sub>2</sub> –Emission, die "alleine" mit der Erderwärmung assoziiert wird.
- Die im Vergleich zu CO<sub>2</sub> kurze Lebensdauer der Rußpartikel in der Atmosphäre verspricht eine schnelle positive Auswirkung auf die globale Temperatur durch die Reduktion der Rußemission.
- Die Rußemission ist ein Ergebnis von ineffizienter Verbrennung und lässt sich daher mittels geeigneter Ingenieurlösungen minimieren. Im Gegensatz dazu ist CO<sub>2</sub> stets mehr oder weniger mit der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen verbunden [81].

Neben den Gesundheits- und Umweltaspekten kann die Rußbildung während der Verbrennung eine Verschmutzung von nachgeschalteten Anlageteilen verursachen und dabei auf Dauer die Verbrennungsanlage beschädigen bzw. zu Funktionsstörungen führen. Aus diesen Gründen ist die Rußentstehung absolut unerwünscht und die Minderung der Rußemission ist eines der wichtigsten Ziele der modernen Verbrennungstechnik.

Der Ruß kann jedoch auch eine positive Rolle in der Verbrennung spielen, z.B. bei Flammen, die zur direkten Beheizung in der Hochtemperaturtechnik benutzt werden. In solchen Flammen wird die Intensität der Wärmeübertragung durch die Strahlung der vorhandenen Rußpartikeln, die - im Gegensatz zu den restlichen gasförmigen Flammenkomponenten - das charakteristische kontinuierliche Emissionsspektrum im Bereich der Wärmestrahlung aufweisen, verstärkt. Dieser Effekt wird sichtbar durch das rötlich-gelbe bis hin zu weißem Leuchten in "rußenden" Flammen. Auch in solchen Fällen ist ein vollständiger Rußabbrand vor dem Verlassen des Feuerraumes zu gewährleisten, um aufwendige Nachreinigungsverfahren (Nachverbrennung, Rußfilter usw.) zu vermeiden. Eine erhöhte Strahlungswärmeübertragung ist aber oft unerwünscht, z.B. in Gasturbinen, wo große Wärmebelastungen auf die Wände der Brennkammer zu vermeiden sind. Dasselbe gilt für Verbrennungsanlagen, deren Ziel die Bereitstellung eines Heißgasstromes ist, der zur indirekten Wärmeübertragung auf niedrigem Temperaturniveau, bestimmte Kessel und Öfen oder zu Antriebszwecken wie bei Verbrennungsmotor oder Flugzeugtriebwerke dienen soll. Dort wird die Energiefreisetzung aus der Flamme zur Umwandlung in Abgaswärme bzw. Überführung in kinetische Energie verwendet [82]. Daher ist die Rußbildung nach Möglichkeit komplett zu unterdrücken, wie bei den blau brennenden Flammen.

Die Bildung von Rußpartikeln in Kohlenwasserstoffflammen ist ein komplexer chemisch/physikalischer Prozess, der auf einer sehr großen Zahl von chemischen Reaktionen, einem wechselseitigen Stofftransport und makro- sowie mikroskopischer Strömungsmechanik beruht. Dieser Vorgang kann als Stoffübergang von der Gasphase in eine feste Phase angesehen werden. Dabei ist die Oberfläche des Feststoffs weder definiert noch besitzt der Feststoff eine einheitliche chemische und physikalische Struktur. Die genauen Reaktionsmechanismen, die zur Rußbildung führen, sind bis heute noch in manchen Details nicht verstanden. [2, 3, 121]. Es gibt weitestgehend Einigkeit darüber, dass die Rußbildung in mehrere Phasen eingeteilt werden kann. Zunächst werden Rußvorläufermoleküle wie z.B. Ethin, Benzol oder kurzkettige, ungesättigte Radikale gebildet. Anschließend kommt es zur Bildung und zum Wachstum von polyzyklischen, aromatischen Kohlenwasserstoffen, gefolgt von Rußkeim- und Primärpartikelbildung. Eine Alterung und Agglomeration der Rußpartikel kommen als nächster Schritt. Allen diesen Schritten ist die Oxidation überlagert, die auftritt, sobald Rußpartikel oder Rußvorläufer mit ausreichend hoher Temperatur in eine Zone mit O<sub>2</sub>- Überschuss bzw. ausreichend hoher OH- Konzentration eintreten.

Die Rußbildung ist stark von der Temperatur, der Kohlenwasserstoffart, dem Brennstoff/ Oxidator Verhältnis und der Verweilzeit abhängig. Die optimale Temperatur für diesen Prozess liegt um 1650 K [84]. Wenn die Temperaturen höher sind, kommt es zum Zerfall der Vorläufermoleküle und bei deutlich tieferen Temperaturen werden diese Vorläufer nicht gebildet. Der Ruß entsteht durch das Wachsen der Vorläufermoleküle (PAK's) unter fetten Verbrennungsbedingungen (Sauerstoffmangel) und Reaktionsquench [2, 3, 121].

Wie im vorherigen Abschnitt erläutert, sind beim Autreten von Verbrennungsinstabilitäten mehrere Erregungsmechanismen möglich und viele vermutlich noch nicht bekannt. Trotzdem lässt sich eine Aufteilung in Haupterregungstypen vornehmen, wie z.B. die Klassifizierung von Lieuwen und Zinn [63]. Es ist naheliegend, dass - unabhängig vom Erregungsmechanismus - merkliche Veränderungen in den Mischungsprozessen, Luftzahl, Wärmefreisetzung, Tempera-turverteilung, Verweilzeit u.a. zu erwarten sind. Als direkte Folge können die komplexen Prozesse der Entstehung und des Wachstums von Rußvorläufermolekülen sowie die Bildung und Oxidation von Ruß signifikant beeinflußt werden. Wie genau sich solche Störungen während der Verbrennung auf die Rußbildung und Oxidation auswirken, ist weitestgehend unbekannt und in den existierenden Rußvorhersagemodellen nicht berücksichtigt. Diese Arbeit ist der Antwort auf einen Teil der offenen Fragen gewidmet.

Damit man das komplexe Zusammenspiel zwischen den Verbrennungsinstabilitäten und den Prozessen auf dem Weg der Rußentstehung in der Brennkammer besser verstehen kann, ist es notwendig, die grundlegenden *physikalisch-chemischen Mechanismen* der Rußbildung zu betrachten.



molecular weight, time



Wie bereits erwähnt, lassen sich die physikalisch-chemischen Prozesse der Rußbildung in der Verbrennung in mehrere Phasen oder nTeilprozesse untergliedern (Abb. 2-11):

- Bildung der Rußvorläufermoleküle wie C2H2
- Bildung der ersten aromatischen Verbindungen
- Wachstum der PAK's
- Primärpartikelbildung ("junger" Ruß)
- Partikelkoagulation
- Anlagerung der PAK's an die Rußoberfläche
- Heterogene Oberflächenreaktionen- Rußpartikelwachstum und Oxidation
- Agglomeration



Abb. 2-11 Prozesse der Rußpartikelbildung aus der Gasphase [83].

Die Entstehung von Ruß bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen kann als Polymerisationsprozess verstanden werden, bei dem durch Anlagerung von Kohlenstoff an der PAH –Oberfläche immer wieder die gleiche Reaktionsabfolge abläuft. Der eigentlichen Partikelbildung sind immer Reaktions- und/oder Transportprozesse von Gasphasenspezies vorgeschaltet, deren Kinetik die Bildung der Partikelvorläuferspezies kontrolliert. Beim oxidativen Abbau der Edukte der Verbrennung entstehen zunächst reaktive Radikale, Ethen und Ethin [84, 85], die über verschiedene Reaktionsrouten erste aromatische Ringe bilden können [86, 87].

Bei den Rußvorläufern kann es sich um einfache, stabile Kohlenwasserstoffverbindungen wie Ethin, Benzol und seine Derivate oder auch aliphatische Verbindungen handeln. Andererseits werden als Rußvorläufer reaktive Spezies wie Molekülbruchstücke, also Radikale wie  $CH_3$ ,  $CH_2$ – C=CH,  $C=CH=CH_2$  oder  $CH=CH=CH_2$  angesehen.

Bei der Verbrennung von n-Paraffinen, i-Paraffinen und cyclo-Paraffinen ist die Bildung der ersten aromatischen Verbindungen, vor allem Benzol, besonders wichtig. Unter den hohen Temperaturen in der Flamme werden die Brennstoffmoleküle bei Sauerstoffmangel durch Wasserstoffabstraktion in Radikale aufgespalten. Als Ergebnis dieser Wasserstoffabstraktion und anschließender Spaltung der C-C Bindungen werden die Brennstoffbruchstücke immer kurzkettiger und durch die Wasserstoffabstraktion auch zunehmend ungesättigter, sodass schließlich die oben erwähnten, reaktiven Spezies in vergleichsweiser hoher Konzentration vorliegen. Der dominante Reaktionspfad zur Bildung von Benzol oder dem Phenyl-Radikal ist die Addition von zwei  $C_3H_3$  Radikalen. Zur Bildung von Benzol bzw. ersten aromatischen Verbindungen tragen auch i-·C<sub>4</sub>H<sub>3</sub> und i-·C<sub>4</sub>H<sub>5</sub> zusammen mit Ethin (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) bei (2). Der exakte Reaktionsmechanismus, nach dem aus zwei·C<sub>3</sub>H<sub>3</sub> Radikalen Benzol entsteht, war lange Zeit Gegenstand experimenteller und quantenchemischer Untersuchungen. Heutzutage ist unstrittig, dass dieses Radikal resonanzstabilisiert ist:  $CH_2-C=CH\leftrightarrow CH=C=CH_2$ . Die Kombination der zwei·C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>-Molekülen liefert drei mögliche Zwischenprodukte:



Abb. 2-12 Kombination von zwei C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>- Radikalen, P.R. Westmoreland, S. 41 in [2].

Bei der Pyrolyse von Hexa-1,5-diin, Hexa-1,2-dien-5-in und Hexa-1,2,4,5-tetraen entstehen Dimethylencyclobuten (DMCB), Fulven und Benzol. Dadurch werden DMCB und Fulven als weitere wichtige Zwischenprodukte auf dem Weg zum Benzol bestätigt.





Durch weitere Addition der bereits genannten reaktiven Spezies an die ersten aromatischen Verbindungen werden polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAHs) wie Naphthalin, Acenaphthalin, Indan, Inden, Pyren und weitere gebildet. Dieser Prozess ist mit der Eliminierung von Wasserstoff und der anschließenden Addition von kurzkettigen Kohlenwasserstoffradikalen verbunden. Daher wird er nach Frenklach und Wang [89, 90, 3] HACA-Mechanismus (Hydrogen Abstraction Carbon Addition bzw. Hydrogen Abstraction C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> Addition) genannt (Abb. 2-14). Es ist möglich, dass sich aber auch Benzolringe über einen Radikalmechanismus direkt zusammenschließen. Insbesondere wenn im eingesetzten Brennstoff Aromaten vorhandenen sind, ihre Konzentration während der Verbrennung also hoch ist, geht man heute davon aus, dass sie nicht zwangsläufig in kleinere Bruchstücke zerfallen, sondern auch direkt an der Bildung und dem Wachstum der PAHs teilnehmen [81, 91].



a) H - Abspaltung und C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> - Anlagerung



b) Ringzusammenschluss

Abb. 2-14 PAH- Wachstum nach dem HACA- Mechanismus [2, 91].

Die polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe besitzen eine zweidimensionale Struktur mit einer Größe von wenigen nm in die einzelnen Raumrichtungen, da die Addition von Kohlenwasserstofffragmenten nach dem HACA- Mechanismus in einer Ebene stattfindet. Der entscheidende Punkt, ab dem man von Rußkeimen sprechen kann, ist wenn die PAK's in ein dreidimensionales räumliches Gebilde übergehen. Diese Dreidimensionalität kann z.B. durch die Kollision von zwei PAK- Molekülen entstehen. Die beiden Moleküle werden zunächst durch Van-der-Waals-Kräfte zusammengehalten, nachfolgend können sie jedoch durch aliphatische Brücken, die aus Seitenketten entstehen, verknüpft werden. Die so gebildeten Rußkerne besitzen Durchmesser von wenigen Nanometern und werden auch als PNP (precursor nanoparticles) oder NOC (nano organic carbon) bezeichnet [2]. Diese Rußkerne wachsen im Weiteren durch heterogene Oberflächenreaktionen, wobei die Gasphase als Kohlenstoffquelle dient. Über 90 % des Rußes wird in der Phase des Oberflächenwachstums gebildet. Eine entscheidende Rolle als wichtigster Rußvorläufer und bei dem HACA- Mechanismus spielt Ethin (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>), dessen Konzentration in der Flamme stark luftzahlabhängig ist (Abb. 2-15). Außerdem können

30

polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe u.a. Naphthalin, Acenaphthalin und Pyren an der Oberfläche auskondensieren und über den HACA- Mechanismus Brücken zu den Rußkeimen ausbilden [123].



Abb. 2-15 Abhängigkeit der Ethinbildung in CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> Flammen vom Äquivalenzverhältnis [14].

Die neu gebildeten, kleinen, näherungsweise sphärischen Rußkeime können ihrerseits unter rascher Abnahme der Teilchenzahldichte koagulieren. Die Kinetik dieser Koagulationsprozesse wird in Modellen durch die Smoluchowsky-Gleichungen beschrieben [83]. Die Lösung dieser Gleichungen liefert nach einer kurzen Relaxationszeit eine sich selbst erhaltende Größenverteilung (log-Normalverteilung), deren Form sich zeitlich nicht mehr ändert. Die bei der Koagulation entstandenen Lücken zwischen zwei Rußkeimen werden durch heterogene Anlagerung von Ethin und Aromaten aufgefüllt, und es entstehen weitgehend sphärische Teilchen mit einer Größe von bis zu 50nm [3, 92, 121]. Dabei ist der Übergang vom Rußkeim zum Rußpartikel nicht klar definiert. Dank TEM/REM Aufnahmen ist bereits bewiesen, dass Ruß in der Größenordnung von 100 nm nicht mehr aus sphärischen Partikeln besteht. Er ist aus verzweigten Ketten von locker verknüpften, annähernd kugelförmigen Partikeln mit einem Durchmesser von 15 – 35 nm zusammengesetzt. Die zuletzt genannten, kugelförmigen Partikel, werden daher auch Ruß-Primärpartikel genannt. Offensichtlich ist, dass, nachdem die Rußkerne auf die typische Größenordnung der Primärpartikel angewachsen sind, der Punkt erreicht, an dem sie bei einer Kollision untereinander nicht mehr koagulieren, sondern zu den besagten Ketten agglomerieren. Mögliche Ursachen hierfür können das zunehmende C/H-Verhältnis, abnehmende Kollisionsgeschwindigkeiten oder zunehmende Festigkeit durch Brückenbildung der größer werdenden Partikel sein. Außerdem sind äußere Effekte wie eine abnehmende Temperatur nicht auszuschließen, da vor allem in stationären Flammen die Partikel mit dem aufsteigenden Gasstrom

aus der heißen Reaktionszone transportiert werden. Alle diese Phänomene lassen sich unter dem Begriff der Alterung der Rußkeime beziehungsweise Primärpartikel zusammenfassen. Im Laufe dieser Alterung werden die "jungen" Rußpartikel (C/H ~1) immer graphitähnlicher, wobei in dem emittierten Ruß ein viel größeres Verhältnis (C/H>>1) nachgewiesen werden kann. Dazu nimmt mit zunehmender Verweilzeit die Konzentration der Wachstumsspezies in der Gasphase merklich ab. Die Rußteilchen können z.B. durch OH-Radikale auch wieder oxidiert werden [2, 121]. Diese Oxidationsreaktionen führen zu einer Reduktion des Partikelvolumens und haben daher einen erheblichen Einfluss auf die in erster Linie durch Koagulationsprozesse definierte log-Normale Größenverteilung der Rußpartikeln. Die heterogenen Oberflächenwachstumsund Oxidationsreaktionen von Ruß lassen sich durch den folgenden Mechanismus beschreiben [93]:

$$C_i^{Ru\beta}H + H \leftrightarrow C_i^{Ru\beta} * + H_2$$
 2.39

$$C_i^{Ruis}H + OH \leftrightarrow C_i^{Ruis} * + H_2O$$
2.40

$$C_i^{Ru\beta} * + H \leftrightarrow C_i^{Ru\beta}H$$
 2.41

$$C_{i}^{Ru\beta} * + C_{2}H_{2} \leftrightarrow C_{i+1}^{Ru\beta}H + H$$
2.42

$$C_i^{Ru\beta} * + O_2 \leftrightarrow C_{i-1}^{Ru\beta} * + 2CO$$
2.43

$$C_{i}^{Ru\beta}H + OH \leftrightarrow C_{i-1}^{Ru\beta} * + HCO + CH$$
 2.44

In Analogie zum planaren Wachstum der PAK's beschreibt dieser Mechanismus das Oberflächenwachstum bzw. die Oberflächenoxidation durch eine Abfolge von Wasserstoffabstraktions- bzw. Kohlenstoffadditionsreaktionen. Hierbei stellt  $C_i^{Ruß}H$  eine reaktive Stelle an der Oberfläche der Rußpartikel dar und  $C_i^{Ruß}$  \* ist das entsprechende Radikal. Diese Radikale werden durch die Reaktionen (2.39) und (2.40) gebildet. Eine Deaktivierung der Radikale stellen die entsprechenden Rückreaktionen sowie die Reaktion (2.41) dar. Eine Addition von Kohlenstoff findet in Reaktion (2.42) statt. Bei den Reaktionen (2.43) und (2.44) handelt es sich um Oberflächen-Oxidationsreaktionen [2, 3]. Die heterogenen Oberflächenwachstums- und Oxidationsreaktionen, die im Wesentlichen die in der Verbrennung gebildete Rußmenge bestimmen, sind stark von Temperatur- und Spezieskonzentration der Edukte, wie PAK´s, O<sub>2</sub> und OH abhängig. Wenn die Bedingungen in der Brennkammer "ungünstig" für das Rußwachstum sind, verschiebt sich das Reaktionsgleichgewicht in Richtung der Edukte, und gleichzeitig werden die Oxidationsprozesse intensiviert. Durch äußere oder innere Störungen verursachte Veränderungen in den Mischungsprozessen, Luftzahl, Wärmefreisetzung, Temperaturverteilung, Verweilzeit u.a. können solchen "ungünstigen" Bedingungen im Verbrennungssystem auftreten und somit die Rußentstehung und Oxidation bzw. die Emission von Ruß in der Atmophäre signifikant beeinflußen.

In der vorliegenden Arbeit werden die Temperatur- und Geschwindigkeitsfelder sowie die Rußpartikelgrößenverteilung und Rußvolumenbrüche in der Brennkammer unter Einwirkung von Verbrennungsinstabilitäten experimentell bestimmt. Eine vollständigere Analyse erlaubt die Detektion einer Reihe wichtiger Vorläufermoleküle wie Naphthalin, Acenaphthalin, Indan, Inden, Pyren und der OH-Konzentration während des Verbrennungsprozesses. Die Erkenntnisse und der Bezug zur bereits vorhandenen Theorie werden in der zusammenfassenden Diskussion dargestellt.

Im folgenden Abschnitt werden die angewendeten experimentellen Methoden und der Messaufbau näher diskutiert.

# 3 Messaufbau und experimentelle Methoden

In diesem Kapitel wird im ersten Abschnitt das für die experimentellen Untersuchungen eingesetzte Verbrennungssystem näher beschrieben. In den folgenden Abschnitten sind die experimentellen Methoden und Aufbauten sowie die Betriebsbedingungen bei den einzelnen Messkampagnen dargestellt.

## 3.1 RQL-Modellbrenner

Die experimentellen Untersuchungen in dieser Arbeit wurden in einem technik-nahen Verbrennungssystem durchgeführt. Es handelt sich hierbei um einen Modellbrenner, der für gasförmige Brennstoffe mit optischem Zugang für die Anwendung von optischen Messmethoden ausgelegt und gebaut wurde (siehe Abb. 3-1).



Abb. 3-1 Doppeldralldüse mit primärem (weiße Pfeile) und sekundärem (gelbe Pfeile) Luftzustrom. Der Brennstoff wird mit den roten Pfeilen dargestellt [77].

Für die Flammenstabilisierung wurde eine Doppeldralldüse für gasförmige Brennstoffe ausgelegt. Die Verbrennungsluft wird den beiden Drallerzeugern separat zugeführt, deshalb kann der Durchfluss individuell gesteuert werden. Die aus zwei Drallerzeugern bestehende Doppeldralldüse wurde in einigen weiteren Teilprojekten des Sonderforschungsbereichs SFB 606 eingesetzt [77]. Der innere Primär-Drallerzeuger hat 8 Drallkanäle mit einem rechteckigen Querschnitt (5.2 mm x 6.7 mm), die zu einem konischen und anschließend kreisförmigen Kanal mit einem Durchmesser von 15 mm führen. Der äußere Sekundär- Drallerzeuger besteht aus 12 rechteckigen (4 mm x 5.6 mm) Drallkanälen, die zu einem teilweise konischen Kanal mit einem Auslassdurchmesser von 25 mm führen. Der Brennstoff wird von der Zufuhrlanze über zwei kleine Kammern geführt, die mittels 6 zylindrischer Kanäle (d = 4 mm) verbunden sind. Der Brennstoff verlässt die zweite Kammer durch 60 in Umfangsrichtung verteilte Löcher mit einem Durchmesser von 0.5 mm und mischt sich anschließend mit dem Luftstrom des primären Drallerzeugers. Die theoretischen Drallzahlen für den inneren ( $S_{th,inn} = 0.46$ ) und äußeren ( $S_{th,a} = 1.02$ ) Drallerzeuger unterscheiden sich, und daher ist die resultierende Drallzahl der Strömung von dem Verhältnis der Massenströme beider Drallerzeuger abhängig.





Eine unabhängige Regelung des Luftmassenstroms durch jeden einzelnen der beiden Drallerzeuger wird mittels separater Luftzufuhr bzw. getrennter Lufteinlasskanäle realisiert (Abb. 3-2). Der äußere Luftkanal hat einen quadratischen Querschnitt mit einer Außenabmessung von 100 mm x 100 mm und einer Wanddicke von 5 mm. Dagegen ist die erste Innenleitung zylindrisch mit einem Außendurchmesser von 80 mm und einer Wanddicke von 2 mm. Im Inneren des Innenrohres befindet sich eine zweite zylindrische Leitung mit einem Außendurchmesser von 50 mm und einer Wanddicke von 2 mm, deren Außenwand gleichzeitig als innere Wand für den primären Luftstrom im Plenum dient. Die Brennstofflanze befindet sich innerhalb des dritten Rohres. Die Luft für den sekundären Drallerzeuger wird durch den oberen Lufteinlasskanal zugeführt und strömt weiter zwischen der äußeren Leitung und dem ersten Innenrohr. Zur Homogenisierung des Luftstromes vor dem Eintritt in den Drallerzeuger wird eine Lochplatte mit einer freien Oberfläche von 10 % eingesetzt. Die Luft für den primären Drallerzeuger wird durch den unteren Lufteinlasskanal zugeführt und anschließend mittels einer Lochblende (freie Oberfläche 10 %) homogenisiert. Weiter wird der Luftstrom zwischen dem ersten und zweiten Innenrohr zum Drallerzeuger geführt. Die Brennkammer Abb. 3-3 (quadratischer Strömungsquerschnitt 89 mm x 89 mm, Höhe 114 mm) verfügt durch vier Quarzglas-Fenstern (BxH 74 mm x 112 mm) über optische Zugänglichkeit. Der Auslass besteht aus einem konischen Teil, bei dem der Durchmesser von 75 mm auf 50 mm abnimmt und aus einem zylindrischen Teil mit konstantem Innendurchmesser von 50 mm. Die Untersuchungen unter RQL- Verbrennungsbedingungen wurden mittels einer zweiten Brennkammer in Anschluss an die erste (Abb. 3-4) für die magere Verbrennung realisiert. Die Messungen in dieser Arbeit wurden auf einer Ebene durch die Düsenachse durchgeführt und dabei auf die erste Brennkammer begrenzt, wo die Verbrennung unter brennstoffreichen Bedingungen stattfindet.



Abb. 3-3 Brennkammer mit optischen Zugängen für die Anwendung von non-intrusiven Messmethoden, sowie mit seitlichen Kanälen zur Bestimung der Temperatur, chemische Spezies und Druckschwankungen (Mikrofonmessung) [77].

Als Brennstoff wird ein Erdgas/Ethen Gemisch verwendet ( $\lambda = 0.64, 42 \% C_2H_4, 58 \%$  Erdgas, P<sub>th</sub> = 17.6 kW), das mit Luft unter brennstoffreichen Bedingungen und Atmosphärendruck in der ersten Brennkammer oxidiert wird. Das Luftverhältnis (L = V<sub>Luft,sek</sub>/V<sub>Luft,prim</sub>) zwischen dem äußeren und inneren Drallerzeuger wird, mit Ausnahme der Untersuchungen der Rußbildung unter einer selbsterregten Verbrennungsinstabilität (siehe Kapitel 4.2), mit L = 1.85 konstant gehalten. Der Gesamtluftstrom beträgt dabei 171 I<sub>N</sub>/min. Die Untersuchungen unter einer akustischen Anregung der Strömung werden mittels 4x125W Lautsprechern (zwei pro Luftkanal) realisiert, die an den beiden Luftzufuhrkanälen angebracht werden. Die Versuche wurden mit 33% (ca. 170W) der maximalen Lautsprecherleistung durchgeführt.

Die Antwort der nicht-vorgemischten Drallflamme auf die akustische Anregung der Luftzufuhr wird bei einer Reihe von Anregungsfrequenzen (von 0 Hz bis 350 Hz) untersucht. Zur Quantifizierung der Intensität der angeregten Strömungs-Oszillationen wurde der Schalldruckpegel aus den Daten der Mikrofonmessungen im äußeren und inneren Luftkanal berechnet. Der Vergleich zwischen dem nicht angeregten und angeregten Fall zeigt eine Zunahme des Schalldruckpegels um ca. 19 dB.



Abb. 3-4 RQL-Modellbrenner unter Anregung der Strömung.

# 3.2 Angewendete Messmethoden

In den folgenden Abschnitten sind die in dieser Arbeit eingesetzten experimentellen Techniken und Aufbauten dargestellt.

## 3.2.1 Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII

Die Untersuchung der Rußbildung und -oxidation wird mittels einer *non-intrusiven* laseroptischen Diagnostikmethode realisiert. Dabei handelt es sich um die simultane Zwei- Farben-zeitaufgelöste-laseinduzierte Inkandeszenz (engl. 2-color-TIRE-LII) zur Bestimmung von Rußpartikeleigenschaften, wie Größenverteilung, Rußvolumenbruch und Anzahldichte [94, 121]. Diese Messtechnik basiert auf der simultanen eindimensionalen Detektion des zeitaufgelösten LII-Signals (Schwarzkörperstrahlung der durch Laserpuls erhitzten Partikel bzw. simultan gemessene Temperatur) bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des nicht fokussierten Laserstrahls. Der Messaufbau ist in Abb. 3-5 dargestellt [94].



Abb. 3-5 Experimenteller Aufbau der 2-Farben-zeitaufgelösten-LII Messtechnik [94].

Das LII-Signal wird durch den Einsatz eines frequenzverdoppelten Nd:YAG Pulslasers ( $\lambda$  = 532 nm, Pulsdauer = 10 ns, d<sub>Strah</sub> = 8 mm, Laserenergiedichte = 0.275 J/cm<sup>2</sup>) im Messvolumen induziert. Die Anregungswellenlänge und die hohe Laserenergiedichte wurden zwecks einer Erhöhung der Intensität vom gemessenen LII-Signal auch in Zonen schwach rußender Flamme ausgewählt. Ansonsten wäre die LII-Intensität aus der untersuchten Flamme nicht ausreichend hoch für die Auswertung und somit die Rußpartikeleigenschaften hätten nicht bestimmt werden können. Aus demselben Grund wurde der komplette Laserstrahl (ohne Lochblende) zum Anregen verwendet. Die thermische Strahlung, emittiert von den angeregten Partikeln, wird mittels einer sphärischen Linse L<sub>1</sub> erfasst. Anschließend wird das Signal durch eine dichroitische Platte (DP) in zwei Wellenlängenbereiche gespaltet:  $\lambda_1 > 500$  nm und  $\lambda_2 < 500$  nm. Die thermische Strahlung beider Wellenlängenbereiche wird mittels geeigneter Linsen L2 und L3 zur Schlitzblende (Öffnung der Schlitzblende = 1250 μm) einer Streak-Kamera (Hamamatsu C7700, zeitliche Auflösung 3.9 ns/Pixel) geführt. Die Sensitivität des Messverfahrens bezüglich der Form der Größenverteilung ist umso besser, je länger der Temperaturverlauf beobachtet werden kann. Hierfür sind Detektoren mit einer hohen Dynamik (≥1:10 000) und effektive optische Einheiten zur Sammlung und Abbildung des Signals erforderlich. Diese Anforderungen werden von der Streak – Kamera erfüllt [83]. In früheren Untersuchungen mit Photomultipliern konnten LII-Signale nur über einen Zeitraum von 400ns detektiert werden. Eine schematische Darstellung der Funktionsweise der Streak-Kamera findet man in Abb. 3-6.



Abb. 3-6 Vereinfachte Darstellung der Funktionsweise einer Streak-Kamera [95].

In dem abgebildeten Beispiel werden vier Lichtpulse mit unterschiedlicher Intensität und örtlicher Position zu unterschiedlichen Zeiten durch eine Schlitzblende geführt und auf der Photokathode abgebildet. Anschließend werden die Photonen in eine der Lichtintensität proportionale Anzahl von Photoelektronen umgewandelt. In einem nächsten Schritt werden die Photoelektronen mittels eines Spannungsfeldes (Accelerating Mesh) in Richtung eines Phosphorschirms beschleunigt. Auf dem Weg zum Phosphorschirm passieren die beschleunigten Elektronen eine lotrechte Ablenkungseinheit (Sweep Elektrode). Die Sweepelektroden bauen eine Hochspannung auf, die linear mit der Zeit zunimmt. Die Photoelektronen werden dadurch, abhängig von dem Zeitpunkt des Passierens der Sweep Elektrode, in senkrechter Richtung abgelenkt. Am Ende werden die Photoelektronen (MCP-Micro Channel Plate) vervielfacht und auf dem Phosphorschirm wieder in Licht umgewandelt. Dabei wird der zeitlich erste Lichtpuls an der obersten Stelle des Phosphorschirms abgebildet und somit wird die zeitliche Intensitätsverteilung durch eine räumliche Intensitätsverteilung ersetzt [83]. Dieses Licht wird durch eine angekoppelte CCD Kamera [*HAMAMATSU*- Digital CCD Camera, C4880-21] detektiert.

Bei der eingesetzten Modifikation der LII-Technik wird das LII-Signal aus einer engen Zone (d<sub>Strah,Detektion</sub> = 1,84 mm) des Laserstrahls aufgenommen. Die örtliche Auflösung der Streak -Kamera wird über die Breite des Detektionschips (12 mm) bzw. der Anzahl der Pixel in horizontaler Richtung (512 Pixel) bestimmt. In Verbindung mit der Vergrößerung der 2 – Farben zeitaufgelösten – LII Optik ergibt sich damit eine Gegenstandslänge von 34,5 μm pro Pixel [83, 98]. Damit das untersuchte Feld komplett erfasst wird, werden Abschnittmessungen durchgeführt. Aufgrund der niedrigen Rußkonzentration und dementsprechend schwachen LII-Signal-Intensität in der untersuchten Flamme war es notwendig, ein relativ großes Messvolumen (Minderung der räumlichen Auflösung) auszuwerten. Die thermische Strahlung der Rußpartikel wird über das totale Gaußsche Laserstrahlprofil akkumuliert. Die Größe des Messvolumens ist in senkrechter Richtung durch die Öffnung der Schlitzblende der Streak-Kamera, unter Berücksichtigung des Vergrößerungsfaktors 220/150 = 1.47, limitiert und beträgt 850 μm. In horizontaler Richtung wurden 40 Spalten ausgewertet, was bei 34,5 μm pro Pixel ein Bereich von 1380 μm Breite bedeutet. Direkt vor der Schlitzblende der Streak-Kamera werden Interferenzfilter montiert, die eine weitere Einengung (Wellenlängenfilterung) des detektierten LII-Signals in beiden Wellenlängenbereichen ermöglichen. Die zentrale Wellenlänge des Filters in dem geraden optischen Strahlengang liegt bei  $\lambda_1$  = 650 nm (FWHM 40 nm) und für den zweiten umgeleiteten Strahlengang  $\lambda_2$  = 450 nm (FWHM 40 nm).

Durch die Anwendung des Planck'schen Strahlungsgesetzes für reale Strahler kann die zeitliche Evolution der Partikelensemble-Temperatur aus dem gemessenen Verhältnis des zeitaufgelösten LII-Signals, bei zwei Wellenlängen, berechnet werden [94, 96-102]. Wenn  $exp(hc/\lambda Tk_B) >> 1$  [103], gilt:

$$\mathbf{T} = \frac{hc}{k_B} \cdot \frac{\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1}}{ln \left[ K_{cal} \cdot \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^5 \cdot \frac{I_{\lambda_1}}{I_{\lambda_2}} \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \right]}$$
3.1

mit T-Temperatur, h- Planck'sches Wirkungsquantum, k<sub>B</sub>- Boltzmann Konstante, c- Lichtgeschwindigkeit, K<sub>cal</sub>- Kalibrierkonstante,  $\lambda$ - Detektionswellenlänge,  $\varepsilon$ - Emissivität und I- LII-Signal Intensität. Für Wellenlängen kleiner 650 nm und Temperaturen unter 4700 K ist diese Vereinfachung in sehr guter Näherung möglich. Für die Bestimmung der Temperatur wird die Annahme  $\varepsilon_2/\varepsilon_1 = \lambda_1/\lambda_2$  getroffen [94, 96-98, 101]. Diese Vereinfachung ist in den untersuchten leicht-rußenden Flammen durchaus berechtigt, da E(m) in dem engen Wellenlängenbereich 450–650 nm als Wellenlängen-unabhängig betrachtet werden kann [94, 96-108, 121]. In Diffusionsflammen kann diese Annahme getroffen werden, trotz einiger Restriktionen bei niedrigen HÜB's, ermittelt in jüngsten Untersuchungen von rußenden laminaren Vormischflammen [109, 110]. Einer der Hauptvorteile der simultanen 2-Farben TIRE-LII-Technik besteht darin, dass eine Modellierung der Phase der Laserenergieabsorption nicht notwendig ist, da die Partikeltemperaturen nach dem Laserpuls separat experimentell bestimmt werden. Die Partikelgrößenverteilungen werden durch den Einsatz einer Fitting-Methode ermittelt, indem die simulierten an die gemessenen Partikeltemperaturen durch die Variation von Fitting-Parametern angepasst werden [94, 96-98, 101].

Im Fall eines Partikelsystems, das durch Koagulation dominiert wird, kann die Partikelgrößenverteilung anhand einer log-normalen Verteilung angenähert werden. Hierbei werden zwei Fitting-Parameter benötigt (der Mittelwert r<sub>m</sub> und die Breite der Verteilung σ), um die log-normale Größenverteilung zu beschreiben. Zur Bestimmung der zwei Parameter wird eine multidimensionale nichtlineare Regressionsmethode herangezogen [94, 96-98, 101].

Der Rußvolumenbruch wird aus den LII-Signalen bei 450 nm unter der Annahme einer linearen Beziehung zwischen dem LII-Signal und dem Rußvolumenbruch  $f_V$  berechnet. Die qualitativen Anzahldichten (N<sub>T</sub>) werden aus dem qualitativen Rußvolumenbruch und der quantitativen (absoluten) log-normalen Partikelgrößenverteilung mittels folgender Gleichung ausgerechnet [94, 96-98, 101]:

$$\mathbf{N}_{\mathrm{T}} = \frac{f_{V}}{\left(\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_{m}^{3} \cdot exp(4, 5 \cdot \sigma^{2})\right)}$$
 3.2

Die Daten für die Bestimmung der Rußeigenschaften und der Partikeltemperaturen werden ab dem Zeitpunkt t = 39 ns nach dem Maximum des LII-Signals zur Analyse berücksichtigt. Mit diesem verspäteten Detektieren wird eine mögliche Verfälschung des LII-Signals vermieden, die durch vom Laserpuls verursachte Fluoreszenz der polyzyklischen aromatischen Kohlewasserstoffe (PAK's) verursacht werden kann. Eine Alternative zur Vermeidung der PAK-Fluoreszenz wäre die Auswahl als Anregungwellenlänge 1064nm anstatt 532nm, was aber im untersuchten System andere Nachteile hätte z.B. LII-Intensitätverringerung, schlechtere Absorption als bei 532nm, erschwerte Justage mit unsichtbarem Licht.

Für die Bestimmung der Rußpartikelgrößenverteilungen werden die lokal aufgelösten Hintergrundtemperaturen (vor dem Laserpuls) T<sub>0</sub> benötigt. Die Bestimmung dieser Temperaturen ist mittels räumlich aufgelöste Thermoelementmessungen realisiert. Ein Nachteil von einer gemittelten T<sub>0</sub> ist die Tatsache, dass in turbulenten Flammen T<sub>0</sub> nicht konstant ist und somit vor jedem Laserpuls anders sein kann. Trotzdem werden im nächsten Schritt die Partikelgrößen von 40 einzelnen Temperaturverläufen (Abkühlkurven) und der mittleren T<sub>0</sub> ermittelt, auch wenn dies mit gewissen Ungenauigkeiten verbunden ist. Eine Kalibrierung des Messaufbaus kann mittels einer Strahlungsquelle vorgenommen werden, deren Temperatur- und Emissionsverhältnisse bei diesen Wellenlängen bekannt sind. Eine solche Strahlungsquelle stellt die Wolframbandlampe dar. Die Strahlungstemperatur dieser Lampe lässt sich exakt über den durch die Lampe fließenden Strom bzw. mittels Kalibrierblättern einstellen. Da die Emissionseffizienzen  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  keine Funktion der Wellenlänge (des Wolframband–Graukörperstrahlers) sind, kann die Kalibrierkonstante bei gegebener Strahlungstemperatur und dem gemessenen Intensitätsverhältnis berechnet werden. In dieser Arbeit wird eine Kalibrierkonstante K<sub>cal</sub> = 2,34 bestimmt. Diese kann in sehr guter Näherung als temperaturunabhängig [83] betrachtet werden und damit lassen sich die Partikeltemperaturen aus den LII –Signalen bei zwei Wellenlängen bestimmen.

Zusätzlich wird eine sogenannte Flatfieldkorrektur [83] vorgenommen. Diese ist wegen der ortsabhängigen Lichtempfindlichkeit der Streak-Kamera bei der Detektion von Strahlungsereignissen (LII-Signal) notwendig. In der Mitte des darstellbaren Bildbereichs werden Lichtintensitäten effizienter detektiert als am Rand. Diese unterschiedliche Lichtempfindlichkeit wird mit einer Flatfieldaufnahme korrigiert. Die exakte Vorgehensweise der Flatfieldkorrektur ist in der Literatur ausführlich beschrieben [8, 83].

Phasenkorrelierte Messungen der Rußeigenschaften sind mit dem vorhandenen Messsystem wegen der begrenzten Wiederholungsraten des Nd:YAG Lasers (10 Hz) und des CCD-Chips (0.5 fps) der Streak-Kamera nicht realisierbar.

Eine weitere Einschränkung der Methode ist der Einsatz in Verbrennungssystemen unter Hochdruckbedingungen, die häufig in technischen Verbrennungsanlagen vorzufinden sind. Die eingesetzte Zwei-Farben LII-Messtechnik wurde für Aerosole verschiedener Teilchenmaterialien (Ruß, Eisenoxid, Manganoxid) unter Normaldruck und Unterdruck entwickelt. Die Anwendung in Systemen mit erhöhtem Druck erfordert noch intensive Entwicklungstätigkeit. Unter erhöhtem Druck müssen die Aufheizraten, z.B. durch Verwendung entsprechend kürzerer Laserpulse, erhöht werden. Weiterhin steigt in reaktiven Aerosolen mit zunehmendem Druck die Volumenkonzentration der Teilchen und damit die optische Dichte des Aerosols sehr stark an. Alle quantitativen Zusammenhänge, die zur Auswertung von optischen Signalen (Streuung, LII, Extinktion, LIF, PIV) verwendet werden, basieren implizit auf der Annahme optisch dünner Schichten. Dabei ergibt sich eine maximal zulässige Teilchenkonzentration bzw. ein maximal zulässiger Umgebungsdruck. Ungeklärt ist weiterhin, wie die spektral selektive Absorption eines vom Messvolumen emittierten Signals beim Durchlaufen einer Aerosolschicht zwischen Messvolumen und Detektor korrigiert werden kann. Unter erhöhtem Druck ist diese Fehlerquelle nicht vernachlässigbar [83]. Jedoch wurde die vorgestellte LII-Messtechnik in Verbrennungssystemen mit Drücken bis 2.5 bar erfolgreich eingesetzt [98].

Die LII-Signalintensität ist bei schwach-rußenden Flammen oder in den Bereichen der Flamme mit kleiner Rußkonzentration sehr niedrig und mit hohem Rauschen verbunden, wodurch eine Auswertung/Berechnung von Rußeigenschaften nicht ohne Weiteres möglich wäre. Aus diesem Grund war es erforderlich, die Untersuchungen in der vorliegenden Arbeit unter sehr fetten Bedingungen und mit Zumischung von Ethylen ( $\lambda$  = 0.64, 42 % C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, 58 % Erdgas) durchzuführen.

Der mit dieser Methode ermittelte Rußvolumenbruch ist auf den gemessenen Maximalrußvolumenbruch im untersuchten System normiert. Die in dieser Arbeit eingesetzte LII- Methode erlaubt lediglich eine qualitative und keine quantitative Analyse bezüglich der Rußkonzentration. Die quantitative Bestimmung von Rußvolumenbrüchen erfordert eine spektrale Kalibrierung des LII–Signals, wie z.B. bei der RAYLIX-Technik. Diese verwendet die integrale Extinktion des Laserpulses im Messvolumen. Im Rahmen dieser Arbeit werden die LII – Intensitätsverhältnisse kalibriert und nicht die spektrale LII – Intensitäten.

Weitere detaillierte Information über die LII-Messtechnik und speziell über die simultane 2-Farben -TIRE-LII ist in der Literatur gegeben [94, 96-110, 121].

#### 3.2.2 2D High-Speed PIV

Der Stand der Technik bei den non-intrusiven Untersuchungen von Strömungsgeschwindigkeiten stellt die PIV-Methode (Particle Image Velocimetry) dar. Dabei handelt es sich um die Anwendung von kleinen, µm-Bereich, *seeding* Partikeln, die der Strömung folgen und daher für die Bestimmung der Fluidgeschwindigkeit herangezogen werden. In den vorliegenden Untersuchungen wird eine zweidimensionale Hochgeschwindigkeits-PIV (2D High-Speed PIV, Abb. 3-7) eingesetzt. Die verwendeten *seeding* Partikel bestehen aus MgO. Die Partikel werden mittels einer Laserlichtschicht (Höhe 60 mm, Dicke 0,8 mm) eines Ar<sup>+</sup> Ion cw - Lasers (INNOVA 70C-5, Gesamtleistung 4 W) beleuchtet. Das von den MgO-Partikeln gestreute Licht wird von einer Hochgeschwindigkeitskamera (High-Speed Star 5.1) detektiert.



Abb. 3-7 Messaufbau der 2D High-Speed PIV.

Es werden zwei Bilder im "doppel-frame"-Modus und einer einstellbaren Zeitdifferenz von 20 μs mit 8 kHz Wiederholungsrate aufgenommen. Die Belichtungszeit beträgt für beide Bilder 62 μs. Die zwei Aufnahmen (t und t´) sind als zwei separate Frames im CMOS–Sensor gespeichert. Dies ermöglicht die Bestimmung der Verschiebung der seeding Partikeln in dem Untersuchungsfeld, indem man ein Kreuzkorrelationverfahren der beiden Partikelverteilungen in kleinen Bereichen - Interrogationsfenster (interrogation windows) - anwendet. Die PIV Messtechnik basiert auf dem Prinzip der physikalischen Definition der Geschwindigkeit als Differentialquotient aus der räumlichen Verschiebung pro Zeiteinheit zwischen den Frames. Die räumliche Auflösung der durchgeführten PIV-Messungen beträgt 115 μm/Pixel [127]. Durch die Wahl von Interrogationsfenstern mit einer Größe von 24 x 24 Pixel mit 75 % Überlappung (d.h. effektiv 6 x 6 Pixel) wird die Vektoranzahl erhöht, und dadurch wird eine finale räumliche Auflösung von 6 x 115  $\mu$ m < 0.7 mm erreicht. Ausgehend von der ±0,07 Pixelunsicherheit des Peak-Ermittlungsalgorithmus (adaptive PIV mit Gaußscher Gewichtungsfunktion), ergibt sich eine maximale zufällige Unsicherheit der momentanen Geschwindigkeiten in der Messebene von ±7%. Durch die Anwendung eines Dauerstrichlasers und die dadurch notwendige Reduktion der Belichtungszeit (Aufnahme von einzelnen Lichtpunkten und keine durchgezogenen Lichtlinien der Streupartikeln) ist diese Methode bei Geschwindigkeiten > 45 m/s nicht einsetzbar. Zur Erhöhung der Messgenauigkeit und der Reduzierung der Belichtungszeit war es notwendig, die PIV-Aufnahmen separat in drei Abschnitten über der Düse zu realisieren (Zone 1 von 0 mm bis 35 mm HÜB, Zone 2 von 35 mm bis 65 mm HÜB und Zone 3 von 66 mm bis 103 mm HÜB), statt in einem Bild über die gesamte Brennkammer. Vor dem Einsatz dieses PIV-Messsystems für die Untersuchung der nicht-vorgemischten Drallflammen in dieser Arbeit wurde eine Validierung an einem bekannten und gut untersuchten Geschwindigkeitsfeld durchgeführt [111]. Eine detaillierte Beschreibung und die Vielfalt der existierenden PIV-Messtechniken findet man in [112-114].

### 3.2.3 OH\*-Chemolumineszenz

Unter Chemolumineszenz wird das Eigenleuchten der Flamme (kein Rußleuchten) verstanden. Dabei handelt es sich um eine Lichtemission im sichtbaren und UV-Wellenlängenbereich. Die Chemolumineszenz verdankt man elektronisch angeregten Spezies, die durch eine chemische Reaktion gebildet wird. Jede Spezies emittiert in einem charakteristischen Lichtspektrum. Typische Chemolumineszenz-Spezies sind OH\*, CH\*, C<sub>2</sub>\* und CO<sub>2</sub>\*. Eine adäquate Auswahl optischer Filter ermöglicht die spezifische Detektion der emittierenden Spezies [115].

In der vorliegenden Arbeit wird die OH\*-Chemolumineszenz mittels einer *LaVision High Spee Star CMOS* Hochgeschwindigkeitskamera unter Verwendung eines Signalverstärkers detektiert. Dabei wird die Aufnahme des Chemolumineszenzsignals bei 309 nm mittels eines Bandpassfilters realisiert. Die integralen OH\*-Chemolumineszenz-Aufnahmen sind phasenkorreliert zeitlich gemittelt ohne Abel-Transformation, d.h. die ermittelten Werte werden für das gleiche Phasenintervall der Zyklusperiode zeitlich gemittelt. Das Verzichten auf eine Entabelung wird durch die Voraussetzung für die Anwendung dieses Inversionsverfahrens, dass am Rand und

außerhalb des Messvolumens die detektierte Strahlungsintensität gleich null sein soll, begründet. Dies ist bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Flammen nicht erfüllt. Alle Messungen werden mit einer Hochgeschwindigkeitskamera mit 8 kHz Wiederholungsrate aufgenommen. Diese Ergebnisse ermöglichen es, einen tieferen Einblick und besseres Verständnis der Interaktion zwischen der Strömung und der Verbrennung unter Einwirkung von akustischen Oszillationen zu erhalten.

In laminaren Flammen kann die OH\*-Chemolumineszenz als Indikator für die lokale Wärmefreisetzung (116) dienen. Im Fall einer ideal vorgemischten turbulenten Flamme lässt sich die OH\*-Chemolumineszenz für die Überwachung und die quantitative Analyse der integralen Wärmefreisetzung verwenden [117, 118]. In vielen realen Systemen handelt es sich um Diffusionsoder partiell-vorgemischte (technisch vorgemischte) Flammen, in denen die OH\*-Chemolumineszenz von der Schwankung der Luftzahl beeinflusst wird. Eine Beziehung zwischen der OH\*-Chemolumineszenz-Intensitätsschwankung I' und der Wärmefreisetzungsfluktuation Q'bei Strömungen mit niedrigen Mach-Zahlen liefert Schuermans et al. in [117]:

$$\frac{Q'}{\overline{Q}} = \frac{\dot{m}'}{\overline{m}} + \frac{Y_{Fuel}}{\overline{Y}_{Fuel}},$$
3.3

$$\frac{I'}{\overline{I}} = \frac{\dot{m}'}{\overline{m}} + \alpha \frac{Y_{Fuel}'}{\overline{Y_{Fuel}}}.$$
3.4

 $\overline{Q}$ ,  $\overline{I}$ ,  $\overline{m}$  und  $\overline{Y_{Fuel}}$  stehen für die Mittelwerte der Wärmefreisetzung, der OH\*-Chemolumineszenz, des Massenstroms in der Brennkammer und des Brennstoffmassenanteils. Hierbei gibt  $\alpha$ die Abhängigkeit der OH\*-Chemolumineszenzintensität von den Schwankungen des Brennstoffmassenanteils als Funktion des Mischungsgrades zwischen Brennstoff und Oxidator in der Flamme (teil-, oder nicht-vorgemischte Verbrennung) und daher auch der Luftzahl  $\lambda$  ( $\alpha = f(\lambda)$ ) an. Die typischen Werte für  $\alpha$  in technischen Verbrennungsanlagen liegen im Bereich von 5 bis 10 [117]. Wenn die OH\*-Chemolumineszenzintensität für direkte Bestimmung der Wärmefreisetzung in einer teils-, oder nicht - vorgemischten Flamme eingesetzt wird, ist die Wahl des Faktors  $\alpha$  von entscheidender Bedeutung für die korrekte Interpretation der Ergebnisse. Weitere Beispiele, wo man die OH\*-Chemolumineszenz-Aufnahmen für die Untersuchung der Wärmefreisetzungsfluktuationen in nicht-vorgemischten Flamme eingesetzt hat, findet man in [65, 119, 120].

In dieser Arbeit wird die integrale OH\*-Chemolumineszenz zur besseren Vergleichbarket mit den Untersuchungen der Geschwindigkeit unter Anregung der Strömung bei einer Reihe definierten Frequenzen, phasenkorreliert zeitlich gemittelt. Der Schwerpunkt dieser Untersuchung lag dabei nicht auf der quantitativen Detektion der Wärmefreisetzungsfluktuationen, sondern auf der Bestimmung der örtlichen OH\*-Verteilung in der Brennkammer, der Position und Größe der Zone mit der höchsten OH\*-Konzentration bzw. die Flammenposition in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen- mit und ohne Auftreten von Verbrennungsinsabilitäten. Als eine der wichtigsten Spezies in den Prozessen der Rußoxidation ist die örtliche Verteilung von OH\* ein wesentlicher Faktor in der Steuerung der Rußkonzentration und der Rußpartikelgröße in einem Verbrennungssystem. Wie die OH\*-Chemolumineszenz auf die Oszillationen in der Brennkammer bzw. auf die Verbrennungsinstabilität reagiert, wird in den kommenden Abschnitten ausführlich diskutiert. Es wird eine Hypothese zur möglichen Auswirkung und den Mechanismen des Einflußes auf die Rußbildung und Oxidation in technischen Verbrennungssystemen aufgestellt.

## 3.2.4 Intrusive Temperaturmessung

Die Ermittlung der Temperatur wird mit dem Einsatz von Thermoelementen realisiert. In der Brennkammer werden bei turbulenten reaktiven Bedingungen Thermoelemente vom Typ B (Pt 30 %–Rh 70 % und Pt 6 %–Rh 94 %) mit einem maximalen Fehler von 5 % (< 90 K) und zeitlicher Auflösung von weniger als 350 µs verwendet. Dabei sind Wertschwankungen von etwa 6% vom Mittelwert zu beobachten. Diese sind mit zwei Thermoelementperlen (d<sub>1</sub> = 0.2 mm und d<sub>2</sub> = 0.4 mm) für die Durchführung einer Strahlungskorrektur versehen.

Die zweidimensionalen Temperaturfelder werden mittels eines Interpolationsverfahrens aus den punktuellen Messsignalen (an sieben HÜB, beginnend bei 18 mm HÜB mit einem Schritt von 14 mm in axialer und 2,5 mm in radialer Richtung) berechnet. Die Temperaturmessung liefert die für die Auswertung der LII-Intensitätssignale bzw. für die Bestimmung der Rußeigenschaften notwendigen Daten. Dazu war es erforderlich, Temperaturfelder und radiale Temperaturprofile für alle untersuchten Betriebszustände unter Einwirkung von Verbrennungsinstabilitäten zu ermitteln und diese im Zusammenhang mit den restlichen experimentellen Daten zu analysieren, sowie in Bezug auf die Rußbildung und Oxidation zu diskutieren.

## 3.2.5 Bestimmung der Druckschwankung

Die Druckschwankungen, die beim Auftreten von Verbrennungsinstabilitäten in der Brennkammer und im Plenum vorkommen, werden mittels drei Mikrofonsonden mit *Bruel&Kjaer* Druckfeld-Mikrofonen ermittelt. Die Sonde, die mit der Brennkammer im Kontakt steht, besteht aus einem gewickelten Rohr mit einer geraden Länge von 4 m. Diese Bauweise schützt das Mikrofon vor den hohen Temperaturen in der Brennkammer.

Zur Vermeidung des Eindringens von Abgasen bis zum Mikrofon wird die Mikrofonsonde von einem kleinen Stickstoffstrom durchspült. Die Mikrofone sind mit *Bruel&Kjaer* Signalverstärker verbunden, wobei das Ausgangssignal mittels Fast Fourier Transformation (FFT) von *Agilent 35670a Signal Analyser* transformiert wird.

Durch die Mikrofonsonden ist es möglich, dass das Drucksignal verändert wird und bestimmte Frequenzen verstärkt oder gedämpft werden. Aus diesem Grund ist es notwendig, die Frequenzantwort der Sonde zu kennen bzw. zu messen. Es wurde eine Kalibrierung im für die vorliegenden Untersuchungen relevanten Frequenzbereich 20 bis 1600 Hz durchgeführt. Dies geschieht mit kleinem Abzweigrohr (T-Stück), das als Kalibrierkammer dient. Zwei Mikrofone sind an den gegenüberliegenden Öffnungen angeschlossen und ein Mikrofon ist über die Mikrofonsonde angeschlossen. Ein kleiner Lautsprecher ist an die dritte Öffnung angeschlossen und sendet ein periodisch generiertes Signal (Computer) im Bereich von 20 bis 1600 Hz in das Abzweigrohr. Der Signalanalysator setzt die beiden Mikrofonsignale als Referenz und berechnet die Frequenzantwort der Mikrofonsonde [77].

Aus den mittels der Mikrofonmessungen gewonnenen Informationen (Druckschwankungen mit/ohne ausgeprägte Frequenzen) lässt sich der auf die Hörschwelle bezogene Schalldruckpegel in dem äußeren und dem inneren Luftkanal sowie in der Brennkammen berechnen.

### 3.2.6 Gas Sampling für GC/MS Analysen

Der Einfluss der Anregung der Strömung auf die Rußvorläufermoleküle wird mittels qualitativer GC/MS Messungen (Gaschromatograph gekoppelt mit Massenspektrometer) realisiert. Für diese Untersuchungen wird ein Entnahmesystem aufgebaut, das die intrusive Probenahme aus dem Messvolumen und die anschließende GC/MS-Untersuchung ermöglicht.

Das Entnahmesystem besteht aus drei wesentlichen Teilen: Sonde, Kühlfalle, GC/MS-Analysegerät. Das zu analysierende Gasgemisch wird von der reaktiven Strömung (Flamme) über eine *Sonde* zu einer in flüssigen Stickstoff eingetauchten Kühlfalle geführt. Bei der Entnahmesonde handelt es sich um eine Keramikrohrsonde, die sich durch eine ausreichend hohe Schmelztemperatur, einen kleinen Volumenausdehnungskoeffizienten und Korrosionsbeständigkeit auszeichnet. Ihr Innendurchmesser beträgt 3 mm und ihr Außendurchmesser 4 mm. Zur Probennahme wird die Sonde durch die Kanäle in den Brennkammerstegen (auch für die Temperaturmessung verwendet) in das Brennkammerinnere eingeführt.

Die in der Kühlfalle kondensierten PAK's werden in 5 ml Toluen aufgelöst und anschließend mittels Shimadzu GC/MS-QP 2010SE analysiert. Bei der GC/MS Untersuchung wurde eine *Phenomenex zb-5 msi* (Länge 30 m; I.D.: 0.25 mm) Säule verwendet. Es wurden ca. 18 Spezies in der Gasgemischprobe detektiert, von denen 7 mittels Referenzmessungen und *NIST-Bibliothek* eindeutig bestimmt werden können. Bei der Auswertung werden nur die Verbindungen berücksichtigt, die mit einer Wahrscheinlichkeit von > 90 % nachgewiesen werden können. Da die zeitliche Auflösung dieser Untersuchungen nicht hoch genug ist (Reaktionszeitskala << Probenahme und GC/MS – Analyse Zeitskala), waren keine on-line Messungen möglich, sondern es wurden Proben aus der reaktiven Strömung innerhalb 1 min gesammelt und entsprechend gemittelt.

# 4 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der durchgeführten experimentellen Untersuchungen ausführlich dargestellt und diskutiert. In einem ersten Abschnitt werden die ermittelten Rußeigenschaften in einer turbulenten nicht vorgemischten Erdgas/Ethen-Drallflamme vorgestellt. Zusätzlich werden Resultate der Temperatur- und OH\*- Chemolumineszenzmessungen in einem technisch-relevanten Verbrennungssystem präsentiert. Im zweiten Abschnitt dieses Kapitels werden die Rußeigenschaften und die Temperaturverteilung in der Flamme bei einer Variation des Luftverhältnisses bzw. der Drallzahl und die dabei beobachteten thermoakustischen Schwingungen bei einer selbsterregten Verbrennungsinstabilität gezeigt. Die Auswirkung dieser Änderungen auf die Rußbildung- und -oxidation wird diskutiert. Ein weiterer Abschnitt befasst sich detaillierter mit der Verbrennungsinstabilität und dem Einfluss akustischer Schwingungen auf das Strömungsfeld, die Temperatur- und Speziesverteilung (PAK's), OH\*- Konzentration (Flammenposition und Wärmefreisetzung) in der Flamme. Die Abhängigkeit der chemischen und physikalischen Rußbildungs- und -oxidationsprozesse von allen diesen Parametern wird in den dargestellten Ergebnissen bei einer akustischen Anregung der Strömung deutlich. Der Einfluss der Anregung auf die Rußbildung und -oxidation in der turbulenten nicht vorgemischten Drallflamme wird ausführlich diskutiert.

## 4.1 Turbulente nicht vorgemischte Drallflamme ohne Verbrennungsinstabilitäten

Eines der Ziele dieser Arbeit war die Adaptierung der Zwei-Farben-zeitaufgelösten LII-Methode an ein technisch relevantes Verbrennungssystem. Die Untersuchungen wurden an einem Gasturbinen-Modellbrenner unter atmosphärischen Bedingungen mit RQL-Konzept durchgeführt. Die daraus entstandene breite Datenbasis kann zur Validierung und Weiterentwicklung der Rußmodellierung eingesetzt werden. Der Modellbrenner ist ausführlich in Kapitel 3 dargestellt. Als Brennstoff wurde ein Erdgas/Ethen-Gemisch ( $\lambda = 0.64$ , 42 % C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, 58 % Erdgas, P<sub>th</sub> = 17.6 kW) eingesetzt und unter Sauerstoffmangel mit Luft oxidiert. Unter diesen Bedingungen wird in der ersten brennstoffreichen Brennkammer eine rußende Flamme beobachtet. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Rußeigenschaften, der Temperatur und der OH\*- Chemolumineszenz präsentiert.

### 4.1.1 Rußeigenschaften ohne Verbrennungsinstabilitäten

Die Abb. 4-1 zeigt die interpolierten Felder des zeitlich gemittelten normierten Rußvolumenbruchs, des mittleren Rußpartikelradius und der mittleren normierten Rußpartikelanzahldichte auf einer Ebene in der Düsenachse, die mittels der im Abschnitt 3 beschriebenen 2-Farbenzeitaufgelösten-LII Methode erhalten wurden. Die Standardabweichung des Rußvolumenbruchs  $\sigma_f_V$ , die auf die Maximalwerte mittlere normierte Partikelgröße und die mittlere normierte Rußpartikelanzahldichte sind in Abb. 4-2 aufgetragen. Die Felder wurden aus den über 1.38 mm gemittelten horizontalen Abschnitt-Messungen (sieben Höhen über dem Brenner (HÜB) von 18 mm bis 102 mm mit 14 mm Schritten und auf jeder Höhe von der Düsenachse r = 0 mm bis r = 35 mm mit Schritten von 2.5 mm) mittels Interpolation erzeugt. Jeder Messpunkt (1.38 mm Messabschnitt) wird aus 40 Einzelmessungen ermittelt. Die Werte sind, auf die in der jeweiligen Messung detektierten Maximalwerte normiert.



Abb. 4-1 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Rußeigenschaften - Mittlerer normierter Rußvolumenbruch, mittlerer Rußpartikelradius, mittlere Rußpartikelanzahldichte - in einer Ebene durch die Düsenachse.

Aus den Ergebnissen erkennt man, dass die maximale Rußkonzentration in den achsnahen Bereichen (0-10 mm in radialer Richtung) auftritt. Diese hohe Rußkonzentration findet man ab einer HÜB von 46 mm bis 74 mm. Weiter stromaufwärts sinkt die Konzentration von Ruß sehr stark, bis man keinen Ruß mehr nachweisen kann. Ab HÜB von 60 mm und r = 30 mm beträgt die Konzentration von Ruß 20 % des Maximalwertes. Bei kleineren HÜB's im äußeren Bereich der Flamme ist die Detektionsgrenze der eingesetzten Methode unterschritten (siehe Kapitel 3) und Ruß kann nicht nachgewiesen werden. In den Zonen zwischen r = 15 mm und r = 30 mm sinkt der Rußvolumenbruch auf 50 % bis 20 % des Maximalwertes. Die größten mittleren Rußpartikelradien (r<sub>m</sub> = 20 nm und r<sub>m</sub> = 18 nm) werden in der Zone HÜB von 18 mm bis 32 mm und in radialer Richtung r = 5 mm bis r = 7.5 mm detektiert. Große Partikeln werden auch in der Flamme bei HÜB 46 mm sowie bei HÜB 88 mm bis 102 mm und r = 10 mm bis r = 25 mm beobachtet. Die kleinsten Partikeln (r<sub>m</sub> = 3 nm bis 4 nm) wurden in den Zonen HÜB 74 mm bis 74 mm bis HÜB 88 mm und r = 0 mm bis r = 2.5 mm sowie bei HÜB 74 mm und r = 12.5 mm bis r = 22.5 mm detektiert. In den meisten Zonen weisen die Rußpartikeln einen Radius von  $r_m$  = 5 nm bis  $r_m$  = 8 nm auf.

Weitere wichtige Informationen über das Geschehen in der rußenden Flamme liefert die Anzahldichte der Rußpartikel. Die maximale Partikelanzahl kann in der achsnahen Zone HÜB 74 mm bis HÜB 88 mm und r = 0 mm bis r = 2.5 mm beobachtet werden. Hohe Anzahldichte wird auch bei HÜB 74 mm und r = 12.5 mm, bei HÜB 60 mm und r = 22.5 mm, HÜB 32 mm und r = 17.5 mm, sowie bei HÜB 102 mm und r = 7.5 mm detektiert. In den restlichen Bereichen wurden Partikelanzahldichten von 30 % bis < 10 %, bezogen auf den Maximalwert festgestellt.



Abb. 4-2 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Rußeigenschaften – Standardabweichung des Rußvolumenbruchs, auf dem Maximalwert normierter mittlerer Rußpartikelradius, normierte mittlere Rußpartikelanzahldichte– in einer Ebene durch die Düsenachse.

Wie in Kapitel 2 erläutert, kann die Rußbildung in mehrere physikalische und chemische Teilprozesse untergliedert werden. Alle diese Teilprozesse können parallel ablaufen, sodass die Feststellung des dominierenden Prozesses für jede Zone der Flamme für ein tieferes Verständnis von entscheidender Bedeutung ist. Die Zone, in der die Prozesse der Rußbildung (Entstehung von "jungem" Ruß) dominieren, befindet sich bei HÜB 74 mm bis HÜB 88 mm und r = 0 mm bis r = 2.5 mm. In diesem Bereich wird eine sehr hohe Rußkonzentration detektiert und gleichzeitig werden dort die kleinsten Rußpartikel beobachtet. Dies führt zu einem Maximum der Partikelanzahldichte in dieser Zone [2, 24, 98]. Weitere Bereiche in der Flamme mit einer Dominanz der Rußbildung werden bei HÜB 102 mm und r = 5 mm, HÜB 74 mm und r = 12,5 mm sowie bei HÜB 60 mm und r = 22,5 mm beobachtet.

Die Rußoxidation ist entscheidend für die von dem Verbrennungssystem emittierte Rußmenge. Die heterogenen Oxidationsprozesse an der Rußpartikeloberfläche haben eine Dominanz in den äußeren Flammenbereichen, wo eine höhere Konzentration von O<sub>2</sub> und vor allem OH-Radikalen vorzufinden ist. Diese Zone in der Flamme ist durch einen niedrigen Rußvolumenbruch, niedriger Anzahldichte und relativ große Partikelradien charakterisiert [2, 24, 98]. In den durch Oxidation dominierten Bereichen werden die kleinsten Rußpartikeln völlig oxidiert und es verbleiben nur sehr wenige große Partikeln, für die die Verweilzeit nicht ausreichend für eine vollkommene Oxidation ist. Diese Bereiche liegen bei HÜB 18 mm bis HÜB 32 mm und r = 2,5 mm bis 7,5 mm, HÜB 46 mm und r = 10 mm, r = 15 mm, sowie bei allen HÜB's ab einer radialen Position von r = 25 mm. Bei HÜB 88 mm dominiert die Oxidation schon ab r = 10 mm. Dieses Verhalten bei HÜB 88 mm lässt sich durch die Strömungsverhältnisse in der Brennkammer erklären. Die drallstabilisierte Flamme ist durch die Entstehung einer Rezirkulationszone charakterisiert. Diese Rückströmung trägt teilweise Frischgase (Luftsauerstoff) sowie Radikale (OH) mit sich, die für die Oxidationsprozesse entscheidend sind. Die Umkehr der Strömungsrichtung findet gerade in diesem Bereich statt, wie die nachfolgend dargestellten Geschwindigkeitsmessungen zeigen. Die Ergebnisse der Geschwindigkeitsfeldmessungen werden in den folgenden Abschnitten näher diskutiert.

Die Zone, in der die Prozesse der Partikelkoagulation und die Anlagerung von PAK's an der Partikeloberfläche dominieren, befindet sich bei HÜB 32 mm bis HÜB 60 mm und r = 0 mm bis r = 10 mm. Diese Zone liegt aufgrund der Rückströmung (Rezirkulation) unter der Zone der Rußbildung, aber wird zu einem späteren Zeitpunkt von der reagierenden Strömung erreicht. In diesem Bereich findet man relativ kleine Anzahldichten mit einer Verdopplung der Partikelgröße im Vergleich zur Rußbildungszone vor. Wenn zwei Partikeln zusammenstoßen, kann dies zur Koagulation führen. Dabei entsteht ein einziges Partikel mit einer erhöhten Größe im Vergleich zu den Primärrußpartikeln [2, 24, 98]. Daher sinkt die Partikelanzahl in diesem Bereich. Die Standardabweichung des Rußvolumenbruchs  $\sigma_{\rm fv}$  (Abb. 4-2) erreicht Maximalwerte in den äußeren Flammenzonen (HÜB 60 mm bis HÜB 102 mm und r > 30 mm, HÜB 46 mm und r > 25 mm, sowie HÜB 32 mm bis HÜB 18 mm und r > 12,5 mm). Diese Bereiche sind durch große Geschwindigkeitsgradienten charakterisiert bzw. die Scherzone zwischen der inneren und der äußeren Rezirkulationszone (Theorie aerodynamischer Flammenstabilisierung, Kapitel 2). Die beobachteten Schwankungen in der Rußkonzentration sind auch darauf zurückzuführen.

## 4.1.2 OH\*- Chemolumineszenz und Temperaturverteilung ohne Verbrennungsinstabilitäten

Eine weitere wichtige Informationsquelle ist die örtliche Verteilung der OH\* Radikale in der Flamme. Diese sind ein Indikator für die stattfindenden Verbrennungsreaktionen. Anhand der OH\*- Chemolumineszenz kann man die Flammenposition und die Verteilung der Wärmefreisetzung bestimmen [2, 24, 98]. Mittels einer Hochgeschwindigkeitskamera (siehe Kapitel 3, Messaufbau) wurde die Intensität des Eigenleuchtens der Flamme bei einer Wellenlänge von 308 nm (OH\* Lichtemission) mit einer Frequenz von 3,9 kHz aufgenommen. Gemittelt wird 1 Sekunde lang bzw. über 3900 Einzelbilder (Momentan-Bilder). Die so entstandenen Aufnahmen zeigen die zeitlich mittlere OH\*-Verteilung in der Brennkammer. Die (links) zeigt die ermittelte line-off-sight integrale OH\*-Chemoluminiszenz in der untersuchten Drallflamme. Es ist eindeutig, dass die höchste Konzentration in einer Zone bei HÜB 30 mm und in radialer Richtung bei r = 20 mm liegt. In diesem Bereich kann man auch die größte Wärmefreisetzung (maximaler Brennstoffumsatz) erwarten. Relativ hohe OH\*- Konzentration wird in dem gesamten Bereich von HÜB 20 mm bis HÜB 40 mm und r = 0 mm bis r = 32 mm detektiert. Bei einer HÜB von ca. 20 mm wird dadurch die Position der Flamme festgestellt. Wie zu erkennen ist, handelt es sich bei dem untersuchten Verbrennungssystem um eine leicht abgehobene Flamme. Die OH-Radikale spielen eine sehr wichtige Rolle bei den Prozessen der Rußoxidation und weisen dabei ein komplementäres Verhalten zur Rußkonzentration in der Flamme auf. Solche Komplementarität der Rußpartikel und OH-Radikale wird auch in dieser Arbeit bestätigt. Somit wurde kein Ruß in den Zonen maximaler OH\*-Konzentration detektiert bzw. sehr niedrige Rußkonzentration in den Zonen mit viel OH\*-Radikalen und umgekehrt.



Abb. 4-3 Integraler Mittelwert der OH\*-Chemolumineszenzmessung (links) über 3900 Einzelaufnahmen und mittleres Temperaturfeld (rechts).

Eine Diskussion der Ereignisse in dem untersuchten Verbrennungssystem wäre absolut unvollständig ohne die Berücksichtigung der Temperaturverteilung im Brennraum. Die chemischen Prozesse der Rußbildung und Oxidation sind stark temperaturabhängig und somit die Rußentstehung in der Flamme entscheidend mit der Temperaturverteilung zusammenhängt.

Sind die Temperaturen zu niedrig (< 1200K), kann keine Rußbildung stattfinden, da die Rußvorläufermoleküle nicht entstehen können. Bei sehr hohen Temperaturen (> 1700K) wiederum oxidieren die Rußvorläufer und die schon gebildeten Rußpartikeln (siehe Kapitel 2). In Abb. 4-3 (rechts) ist das Temperaturfeld auf der Ebene in der Düsenachse aufgetragen, das durch Interpolation der mittels Thermoelemente (siehe Kapitel 3) gewonnenen Ergebnissen bestimmt wurde. Die maximale Temperatur T<sub>max</sub> = 1775K in dieser turbulenten nicht vorgemischten Erdgas/Ethen-Drallflamme wird in der Zone bei HÜB 32 mm und r = 25 mm erreicht. Dieser Wert ist kleiner als die berechnete adiabate Temperatur für den untersuchten Fall (Tad = 2022 K, ER-NEST CHEMKIN). Der Hauptgrund dafür ist die Wärmeverluste an die Umgebung, im wesentlichen Teil verursacht durch die Wärmestrahlung der rußenden Flamme (keine adiabaten Bedingungen). Vergleicht man diese Ergebnisse mit der OH\*-Verteilung in der Flamme, kann man feststellen, dass die Bereiche maximaler OH\*-Konzentration und maximaler Temperaturen sehr nah nebeneinander positioniert sind. Dies entspricht den Erwartungen aufgrund der Kopplung des Brennstoffumsatzes mit den OH\*- Radikalen und der Wärmefreisetzung. Die freigesetzte Energie (Wärme) wird durch Wärmeleitung (Diffusion), konvektiven Wärmetransport und Strahlung an die Umgebung übertragen. Unter Berücksichtigung der Strömungsrichtung wird eindeutig, dass man in der Zone maximaler Wärmefreisetzung und in den stromabwärts benachbarten Gebieten die höchsten Temperaturen beobachten kann. Die Position der Maximalwerte der Temperatur bei allen HÜB folgt der Strömungsrichtung und wandert, mit der Ausnahme von HÜB 102 mm, weiter in Richtung der Brennkammerwand. Dabei wird eine ständige Abnahme des Absolutwertes der maximalen Temperatur aufgrund der Wärmeübertragung an die Umgebung bzw. kleinere Temperaturgradienten festgestellt. Die pro Höhe maximalen Temperaturen liegen bei HÜB 46 mm und r = 35 mm, T = 1668K; bei HÜB 60 mm und r = 42.5 mm, T = 1505K; bei HÜB 74 mm und r = 42.5 mm, T = 1350K; bei HÜB 88 mm und r = 42.5 mm, T = 1325K sowie bei HÜB 102 mm und r = 0 mm, T = 1339K. Die niedrigsten Temperaturen findet man in den düsennahen Bereichen, in welchen die kalten Frischgase in die Brennkammer eingedüst werden. Die minimale gemessene Temperatur T<sub>min</sub> = 631K wird bei HÜB 18 mm und r = 7.5 mm detektiert. Die größten Temperaturgradienten findet man bei HÜB 18 mm und HÜB 32 mm. Weiter stromabwärts werden diese Unterschiede minimal und in den oberen Bereichen der Brennkammer fast ausgeglichen. Unter anderem aufgrund der Wärmestrahlung der Rußpartikel, die im thermischen Gleichgewicht mit der umgebenden Gasphase sind, werden in den Bereichen hoher Rußkonzentration vergleichsweise niedrigere Temperauren beobachtet.

Die durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, dass die eingesetzte laser-optische Messtechnik (Zwei-Farben-zeitaufgelösten-LII) in technisch relevanten Systemen wie turbulenten drallstabilisierten nicht vorgemischten Flammen eingesetzt werden kann. Mit Hilfe von zusätzlichen Untersuchungen der Temperatur-, Spezies-, und Geschwindigkeitsverteilung lassen sich grundlegende Phänomene und Zusammenhänge bei der Verbrennung analysieren. Die gewonnenen Erkenntnisse können zu neuen Überlegungen und Konzepten für die optimale Prozessführung künftiger Verbrennungsanlagen führen.

# 4.2 Turbulente nicht vorgemischte Drallflamme mit selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten

Ein Thema, das in der Verbrennungsforschung immer wichtiger wird, sind die Entstehung und die Folgen von Instabilitäten während der Verbrennungsprozesse, z.B. in Gasturbinen und Flugzeugtriebwerken. Diese thermoakustischen Phänomene können die Beschädigung oder die Zerstörung der jeweiligen Verbrennungsanlagen zur Folge haben. Aus ökonomischen und sicherheitstechnischen Aspekten ist ein tieferes Verständnis dieser Phänomene von zentraler Bedeutung. Die Verbrennungsinstabilitäten haben auch Einfluss auf die Entstehung von Ruß in der Brennkammer bzw. auf die Rußemission in die Umwelt. Zurzeit liegen kaum Untersuchungen bezüglich dieses Einflusses vor. In den folgenden Abschnitten wird dieses Thema näher diskutiert, und einige Ergebnisse werden vorgestellt.

Zur Untersuchung der in technischen Verbrennungsanlagen auftretenden thermoakustischen Schwingungen auf die Rußeigenschaften wurden zwei unterschiedliche Betriebspunkte, der eine ohne und der andere mit Auftreten von Verbrennungsinstabilitäten, miteinander verglichen. Die zwei Zustände (schwingend und nicht schwingend) wurden mittels einer Variation des Luftverhältnisses, nicht die Luftzahl, zwischen der äußeren und der inneren Luftzufuhr und einer moderaten Änderung der thermischen Leistung realisiert. Dabei werden die Luftzahl und das Verhältnis von Erdgas zu Ethen in der Flamme konstant gehalten. Aufgrund der unterschiedlichen Drallzahl des äußeren und des inneren Drallerzeugers der eingesetzten Düse, hat die Variation des Luftverhältnisses vom äußeren zum inneren Plenum eine Änderung der Gesamtdrallzahl zur Folge (siehe Kapitel 2). Die Temperaturverteilung und die Rußkonzentrationen in der Flamme wurden für die zwei Betriebspunkte experimentell ermittelt.

Es wurden zusätzlich Mikrofonmessungen zur Bestimmung der auftretenden Schwingungsfrequenz in der Brennkammer und im Plenum durchgeführt. Bei dem ersten Betriebspunkt (BP1) wurde ein Erdgas/Ethen-Gemisch ( $V_{N,Erdgas} = 13,4 I_N$ /min und  $V_{N,Ethen} = 9,6 I_N$ /min) mit Luftsauerstoff verbrannt. Das Luftverhältnis  $V_{N,außen} = 111 I_N$ /min zu  $V_{N,innen} = 60 I_N$ /min für BP1 beträgt 1,85 und die thermische Leistung P<sub>th</sub> = 17,6 kW bei einer Gesamtdrallzahl von S<sub>ges</sub> = 0,74. Bei Betriebspunkt 2 (BP2) wurden etwas höhere Leistungen von P<sub>th</sub> = 20 kW gefahren. Das Brennstoffgemisch ( $V_{N,Erdgas} = 15,3 I_N$ /min und  $V_{N,Ethen} = 11 I_N$ /min) wurde mit Luftsauerstoff mit einem Luftverhältnis ( $V_{N,außen} = 143 I_N$ /min zu  $V_{N,innen} = 51 I_N$ /min) von 2,8 und S<sub>ges</sub> = 0,8 umgesetzt. Die Bedingungen bei BP2 wurden absichtlich so gewählt, dass es zur Verbrennungsinstabilität kommt.

#### 4.2.1 Druckschwankungen bei selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten

In Abb. 4-4 werden die mittels Mikrofonmessungen gewonnenen Informationen über die Druckschwankungen in der Brennkammer sowie in den beiden Plenen (außen und innen) dargestellt (siehe Messaufbau im Kapitel 3). Das Diagramm zeigt die Druckschwankungen (P<sub>rms</sub> in [Pa]) für BP1 und BP2. Es ist deutlich zu erkennen, dass in der Brennkammer bei BP1 keine ausgeprägte Frequenz existiert bzw. keine Verbrennungsinstabilitäten vorkommen. Die maximale P<sub>rms</sub>- Werte liegen unter 20 Pa. Bei BP2 hingegen dominiert die Druckschwankung mit einer Frequenz von 370 Hz und P<sub>rms</sub> = 165 Pa. Diese Schwingungsfrequenz ist auch in beiden Plenen zu finden. Wegen der akustischen Impedanz dieser Verbrennungsanlage und der großen Unterschiede in den zugeführten Luftmengen in beiden Luftkanälen, sind die Druckschwingungsmaxima deutlich zu unterscheiden (P<sub>rms, innen</sub> = 25 Pa und P<sub>rms, außen</sub> = 215 Pa). Die in dem Verbrennungssystem festgestellten Druckschwankungen aufgrund der thermoakustischen Phänomene zeigen das große Auswirkungspotential solcher Störungen auf alle Prozesse in diesem komplexen System.



Abb. 4-4 Druckschwankung in dem Modellbrenner ohne und mit thermoakustischer Verbrennungsinstabilität (BP1 und BP2).

#### 4.2.2 Temperaturverteilung bei selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten

Der Einfluss der aufgetretenen Verbrennungsinstabilitäten auf die Bedingungen in der Brennkammer lässt sich unter anderem mittels Ermittlung der Temperaturverteilung diskutieren. In Abb. 4-5 sind die Temperaturfelder für BP1 und BP2 auf der Ebene durch die Düsenachse, die



durch Interpolation der mittels Thermoelemente (siehe Kapitel 3) gewonnenen Ergebnissen bestimmt wurden, dargestellt.

Abb. 4-5 Zeitlich gemitteltes Temperaturfeld auf einer Ebene durch die Düsenachse in der Brennkammer für beide Betriebspunkte.

Die Flamme bei BP2 zeichnet sich mit insgesamt höheren Temperaturen besonders ab HÜB 74 mm aus. Schon im düsennahen Bereich findet man bei BP2 sehr hohe Temperaturen. Dies kann auch mit der in diesem Fall leicht höheren Leistung der Flamme in Zusammenhang gebracht werden. Eine weitere Beobachtung ist, dass sich die Zone maximaler Temperaturen in Richtung der Wand verschoben hat. Diese Zone korreliert sehr gut mit den Gebieten maximaler OH\*-Konzentration bzw. maximaler Wärmefreisetzung.

Aufgrund dieser Verschiebung kann man eine deutliche Änderung in der Strömungssituation und folglich in der Flammenposition vermuten. Der Anströmwinkel wird dabei vergrößert. Die "kälteren" Bereiche (HÜB 18 mm, X = 2 - 12 mm bis HÜB 46 mm, X = 6 - 18 mm) bei BP1, die durch die zuströmenden Frischgase verursacht werden, sind bei BP2 wesentlich reduziert (HÜB 18 mm, X = 0 - 12 mm bis HÜB 32 mm, X = 4 - 18 mm).

Die Temperaturverteilung in der Flamme bei BP2 ist gleichmäßiger mit kleineren Temperaturgradienten im Vergleich zu BP1. Diese erhöhte Homogenität, auch in radialer Richtung, lässt sich besser in Abb. 4-6 und Abb. 4-7 erkennen.



Abb. 4-6 RadialesTemperaturprofil für BP1 und BP2 bei einer HÜB = 18 mm, 32 mm und 46 mm.

In diesen Diagrammen werden die radialen Temperaturprofile bei verschiedenen HÜB's für BP1 und BP2 dargestellt. Die maximale Temperatur wird bei BP1 ( $T_{max} = 1775K$ ) detektiert. Diese liegt bei HÜB 32 mm und X = 25 mm. Bei BP2 ist die  $T_{max} = 1742K$  und befindet sich bei HÜB 32 mm und X = 32.5 mm. Dabei wird die minimale Temperatur dieser Höhe für BP2 ( $T_{min, 32} = 1100K$ ) bei X = 15 mm und für BP1 ( $T_{min, 32} = 900K$ ) bei X = 12.5 mm beobachtet.


Abb. 4-7 Radiales Temperaturprofil für BP1 und BP2 bei einer HÜB = 60 mm, 74 mm und 88 mm.

Die Temperaturgradienten in radialer Richtung bei BP2 für die HÜB's 32 mm, 46 mm und 60 mm sind kleiner im Vergleich zu BP1. Das Temperaturmaximum auf HÜB 46 mm befindet sich bei X = 35 mm für BP1 ( $T_{max, 46}$  = 1668K) und X = 37.5 mm für BP2 ( $T_{max, 46}$  = 1578K). Die Minimalwerte in dieser Höhe liegen bei  $T_{min, 46}$  = 1181K für BP1 (X = 17.5 mm) und bei  $T_{min, 46}$  = 1226K für BP2 (X = 12.5 mm). Weiter stromabwärts bei HÜB 60 mm findet man  $T_{max, 60}$  = 1505K für BP1 bei X = 42.5 mm und  $T_{max, 60}$  = 1443K für BP2 bei X = 42.5 mm.

Die minimalen Temperaturen liegen bei  $T_{min, 60} = 1300$ K für BP1 (X = 17.5 mm) und  $T_{min, 60} = 1284$ K für BP2 (X = 20 mm). Ab HÜB 74 mm erkennt man höhere maximale sowie minimale Temperaturen für BP2, verglichen mit BP1. Für HÜB 74 mm und HÜB 88 mm ist die  $T_{max, 74} = 1350$ K und  $T_{max, 88} = 1325$ K bei X = 42.5 mm für BP1, und  $T_{max, 74} = 1453$ K und  $T_{max, 88} = 1446$ K bei X = 42.5 mm für BP2. Die Minimalwerte werden ( $T_{min, 74} = 1267$ K und  $T_{min, 88} = 1271$ K) bei X = 17.5 mm und X = 20 mm für BP1 und ( $T_{min, 74} = 1271$ K und  $T_{min, 88} = 1298$ K) bei X = 15 mm und X = 20 mm für BP2 detektiert.

Am oberen Ende der primären (brennstoffreich betriebenen) Brennkammer bei HÜB 102 mm verschiebt sich das Temperaturmaximum in der achsnahen Zone (siehe Abb. 4-8) für beide Fälle ( $T_{max, 102} = 1340$ K, X = 0 mm für BP1 und  $T_{max, 102} = 1434$ K, X = 0 mm für BP2). Die niedrigsten Temperaturen dieser Höhe sind im wandnahen Bereich zu finden. Die Unterschiede in der Temperaturverteilung, wie die Verschiebung der Maximalwerte, Minimierung der Bereiche niedriger Temperaturen sowie die erhöhte Homogenität in der Brennkammer (kleinere Temperaturgradiente) deuten auf eine wesentliche Änderung der Bedingungen im Verbrennungssystem hin, die unmittelbar alle Prozesse beeinflusst. Darunter zählen auch die Rußbildungs- und Oxidationsprozesse, die stark temperaturabhängig sind.



Abb. 4-8 Radiales Temperaturprofil für BP1 und BP2 bei HÜB = 102 mm.

## 4.2.3 Rußeigenschaften bei selbsterregten Verbrennungsinstabilitäten

In Abb. 4-9 ist das ermittelte Rußvolumenbruchfeld für beide Betriebspunkte dargestellt. Die Werte sind auf den gemessenen Maximalrußvolumenbruch normiert. Die in dieser Arbeit eingesetzte LII Methode erlaubt lediglich eine qualitative und keine quantitative Analyse bezüglich der Rußkonzentration (siehe Kapitel 3). Beim Vergleich beider f<sub>V</sub>-Felder in der Brennkammer fällt sofort die Reduzierung der Rußkonzentration bei BP2 ab einer HÜB 74 mm im achsnahen Bereich (X = 0 mm bis X = 10 mm) auf. Dieser verringerte Rußvolumenbruch bedeutet, dass in

diesen Bereichen weniger Ruß detektiert wird und somit die Wärmeverluste durch Rußstrahlung an die Umgebung reduziert werden. Dies neben der erhöhten Leistung der Flamme spiegelt sich in den Temperaturfeldern wider, in denen höhere Temperaturen beobachtet werden. Die höchsten Rußvolumenbrüche bei BP1 findet man in der Zone HÜB 60 mm bis HÜB 102 mm und X = 0 mm bis X = 5 mm. Bei BP2 schrumpft diese Zone und verschiebt sich stromaufwärts auf HÜB 46 mm bis HÜB 60 mm und X = 0 mm bis X = 2.5 mm. Dabei wird der Rußvolumenbruch um bis zu 50 % reduziert. Die äußeren Bereiche der Flamme, in denen die Rußoxidation dominiert, werden bei BP2 in Richtung der Brennkammerwand verschoben (alle HÜB's bei X > 22.5 mm). Für BP1 beobachtet man die Rußoxidation schon ab X > 20 mm bei allen HÜB's.

Insgesamt ist die Verteilung von f<sub>V</sub> im Brennraum für BP2 gleichmäßiger bzw. es liegt ein homogeneres Rußvolumenbruchfeld im Vergleich zu BP1 vor. Es ist offensichtlich, dass es zwischen den beiden Betriebspunkten wesentliche Differenzen in der Strömung, der Temperaturverteilung und den Rußeigenschaften gibt. Der Einfluss der thermo-akustischen Schwingungen in so einer nicht vorgemischten Drallflamme auf die gesamte Verbrennungssituation kann daher nicht vernachlässigt werden.

Die erhöhte Homogenität in dem Temperaturfeld bei BP2 deutet auf eine merklich verbesserte Vermischung der Frischgase (Luft und Brennstoff) und radikalhaltigen Abgase hin. Die kann mit dem erhöhten radialen und axialen Austausch durch die Schwingungswellenausbreitung in der gesamten Verbrennungsanlage erklärt werden. Die Flamme zeigt dann kleinere Konzentrations- und Temperaturgradienten bzw. weniger lokal "fette" Bedingungen und verhält sich eher wie eine Vormischflamme. Die physikalischen und chemischen Prozesse im Rahmen der Rußbildung und -oxidation sind sehr sensibel gegenüber solchen Änderungen der Temperatur- und Speziesverteilungen, wie z.B. den OH-Radikalen (Rußoxidation) und der lokalen Luftzahl im System. Folglich kann die Entstehung von thermo-akustischen Verbrennungsinstabilitäten gravierende Auswirkungen auf die Rußbildung in der Flamme haben. Die Reduzierung der brennstoffreichen Bereiche (Sauerstoffmangel) wirkt sich direkt gegen die Rußpartikelbildung aus. Hemmend auf die Rußbildung wirken auch die Verkleinerung der Temperaturgradienten und die Minimierung des Flammenquenching. Die Rußoxidation hingegen wird durch die verbesserte Durchmischung des Systems, vor allem mit OH-Radikalen, begünstigt. Mit den ermittelten Rußvolumenbrüchen für BP1 und BP2 (Abb. 4-9) kann der Einfluss der Verbrennungsinstabilitäten auf die Rußbildung und Oxidation bestätigt werden.

Zum Erreichen der selbsterregten thermo-akustischen Schwingungen bei BP2 war es notwendig, einige Parameter wie das Luftverhältnis vom äußeren zum inneren Drallerzeuger (Gesamtdrallzahl) und die thermische Leistung zu variieren. Die Variation dieser Parameter kann auch Einfluss auf die Rußeigenschaften in der Flamme haben.



Abb. 4-9 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter Rußvolumenbruch ohne und mit Auftreten thermoakustischer Verbrennungsinstabilität (BP1 und BP2).

Eine Erhöhung der Gesamtdrallzahl führt zur Änderung der Flammenposition und die Flamme stabilisiert sich auf einer anderen Höhe über dem Brenner als bei der kleineren Drallzahl. Dabei wird die innere Rezirkulationszone massiv beeinflusst und erfährt eine Vergrößerung. Diese Rückströmung spielt eine entscheidende Rolle in der Flamme. Die Rezirkulation führt zu einer "Vorwärmung" der Frischgase-Lieferung von reaktiven Spezies, wie z.B. Radikale essenziell für die Verbrennungsreaktionen aus der Flammenzone. Die Erweiterung der inneren Rezirkulationszone führt unmittelbar zu einer Änderung der äußeren Rezirkulationszonen. Das wirkt sich auf die Scherschicht zwischen der IRZ und der ÄRZ aus, d.h. die Prozesse des radialen Austausches werden wesentlich verändert. Die Verschiebung des Luftverhältnisses zugunsten des äußeren Drallerzeugers kann einen massiven Sauerstoffüberschuss in den wandnahen Bereichen, und in den achsnahen Zonen einen Sauerstoffmangel bewirken.

Die erhöhte thermische Leistung, die als Folge der erhöhten Brennstoff- und Luftmassenströme entsteht, kann zu einer Verschiebung des thermischen Gleichgewichtes im Verbrennungssystem führen. Dazu werden die globalen Verweilzeiten in der Brennkammer reduziert. Daher darf man die beobachteten Unterschiede im Temperatur- und Rußvolumenbruchfeld zwischen BP1 und BP2 nicht einzig und allein den Verbrennungsschwingungen zuschreiben.

Ein tieferes Verständnis der Mechanismen der Auswirkung solcher Instabilitäten auf das Geschehen im Verbrennungssystem ist nur dann möglich, wenn man Betriebspunkte vergleicht, bei denen die einzige Variable das Vorhandensein einer akustischen Schwingung ist. Dies lässt sich mittels einer von außen aufgebrachter akustischer Anregung realisieren. Daher wurde eine weiterführende umfangreichere Messkampagne unter der Einwirkung akustischer Anregung der Strömung für BP1 durchgeführt. Dabei wurde mit einer Reihe von Anregungsfrequenzen experimentiert. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse und Zusammenhänge werden im nächsten Abschnitt ausführlich dargestellt und diskutiert.

Schon an dieser Stelle aber kann man die Aussage treffen, dass thermo-akustische Schwingungen eine wichtige Rolle für die Rußbildung und -oxidation spielen und diese unbedingt bei der Rußmodellierung zu deren korrekten Betrachtung berücksichtigt werden sollten. Die Vernachlässigung dieser Verbrennungsinstabilitäten kann zu einer falschen Vorhersage der Rußentstehung in diversen Verbrennungssystemen führen und folglich zu einer Unter- oder Überschätzung der Rußemission solcher Verbrennungsanlagen.

# 4.3 Turbulente nicht vorgemischte Drallflamme unter akustischer Anregung der Strömung

Ausgehend von den Erkenntnissen der vorherigen Abschnitte werden in diesem Kapitel, durch eine vertiefte und ausgedehnte experimentelle Untersuchung der Rußbildung und –oxidation, unter akustischer Anregung gewonnene Ergebnisse präsentiert und ausführlich diskutiert.

Mit dem Ziel, ein tieferes Verständnis der Mechanismen der Auswirkung von Verbrennungsinstabilitäten auf die Prozesse der Rußbildung und -oxidation zu erreichen, wurde ein einziger Betriebspunkt unter alleiniger Variation der Schwingungsfrequenz untersucht. Eine solche gezielte Variation und unter Einstellung einer Reihe gewünschter Schwingungsfrequenzen sind nur mittels einer dem Verbrennungssystem von außen aufgeprägter Anregung möglich. In dieser Arbeit wird eine akustische Anregung der Strömung anhand von am inneren und äußeren Luftkanal des Modellbrenners montierten Lautsprechern ermöglicht.

Diese Untersuchung wird als RQL-Verbrennungskonzept (siehe Kapitel 2) unter atmosphärischen Bedingungen und als Betriebspunkt 1 (BP1) realisiert. Die Messungen werden in der ersten (brennstoffreichen) Brennkammer durchgeführt. Das Brennstoffgemisch ( $V_{N,Erdgas} = 13,4$  $I_N/min$  und  $V_{N,Ethen} = 9,6 I_N/min$ ) wird mit Luftsauerstoff ( $V_{N,außen} = 111 I_N/min$  und  $V_{N,innen} = 60$  $I_N/min$ ) oxidiert. Die thermische Leistung beträgt P<sub>th</sub> = 17,6 kW bei einer Luftzahl  $\lambda = 0,64$  und einer Gesamtdrallzahl von S<sub>ges</sub> = 0,74. Es wurden grundsätzlich vier Fälle (Anregung mit 0 Hz (keine Instabilität), 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz) verglichen. Zusätzlich wurden einige Parameter auch bei 50 Hz und halber Anregungsamplitude und bei 200 Hz untersucht.

## 4.3.1 Druckschwankungen

In Abb. 4-10 sind die mittels Mikrofonmessungen gewonnenen Informationen über die Druckschwankungen in der Brennkammer sowie in den beiden Plenen (außen und innen) dargestellt. Das Diagramm zeigt die Druckschwankungen (P<sub>rms</sub> in [Pa]) für den Betriebspunkt ohne Anregung der Strömung und bei 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz Anregungsfrequenz.



Abb. 4-10 Druckschwankungen in der Brennkammer und in den beiden Plenen (außen und innen) unter einer Reihe unterschiedlicher Anregungsfrequenzen.

In dem Fall ohne Anregung findet man erwartungsgemäß keine ausgeprägte Druckschwingung und die Werte halten sich unter  $P_{rms}$  < 10 Pa. Bei allen anderen Fällen findet man die aufgeprägte Schwingungsfrequenz vor, allerdings durch die Systemimpedanz gedämpft. In beiden Plenen wird die gleiche Anregungsenergie zugeführt, aber durch die Hohlraumgeometrie und frequenzabhängige Wellenabsorption / Abschwächung werden unterschiedliche  $P_{rms}$  - Werte detektiert. Diese Dämpfung ist noch deutlicher nach dem Übergang in die Brennkammer, in welcher die kleinsten Druckschwankungen gemessen werden. In der Brennkammer, vor allem bei 50 Hz und 100 Hz, werden auch die zweite und dritte harmonische Welle festgestellt. Gerade bei diesen Frequenzen konnte ein gravierender Einfluß auf die Strömungs-, Temperaturund OH\*-Chemolumineszenzfelder sowie auf die Rußeigenschaften nachgewiesen werden. Im Gegensatz dazu wurde bei der Anregungsfrequenz von 350 Hz kein Auftreten einer harmonischen Welle detektiert.

Zur Quantifizierung der dem Verbrennungssystem zugeführten Energie wurde die Änderung des Schalldruckpegels dargestellt. Der auf die Hörschwelle bezogene Schalldruckpegel im äußeren und inneren Luftkanal beträgt für den Fall ohne Anregung L<sub>P, außen</sub> = 112,4 dB und L<sub>P, innen</sub> = 108,9 dB, und in den Fällen mit einer Anregung führt die zugeführte Energie im Mittel zu einer Erhöhung des Schalldruckpegels wie folgt:

 $L_{P, außen}$  = 130.5 dB und  $L_{P, innen}$  = 128.3 dB.

Das gezielte Einsetzten akustischer Anregung beeinflusst in erster Linie die Strömung durch die Ausbreitung von Druckwellen in den Plenen und in der Brennkammer.

#### 4.3.2 Geschwindigkeitsverteilung in isothermer (nicht reagierender) Strömung

Einen tieferen Einblick ermöglicht uns die Geschwindigkeitsuntersuchung bzw. die Durchführung von 2D High-Speed PIV (siehe Kapitel 3) in der Brennkammer. In einem ersten Schritt wird die Erfassung des Geschwindigkeitfeldes in der isothermen Strömung, d.h. ohne Verbrennung, realisiert. In Abb. 4-11 wird das gemittelte axiale Geschwindigkeitsfeld der isothermen Strömung - in einer Ebene durch die Düsenachse - bei einer Reihe von Anregungsfrequenzen dargestellt.



Abb. 4-11 Das gemittelte (8000 Bilder) axiale isotherme Geschwindigkeitsfeld in einer Ebene durch die Düsenachse unter Anregung der Strömung.

Die Stromlinien erleichtern die genaue Erkennung der Strömungsrichtung im untersuchten Feld. In allen vier Fällen kann eine innere Rezirkulationszone (IRZ) und äußere Rezirkulationszone (ÄRZ) beobachtet werden. Diese sind typisch für drallstabilisierte Flammen und beruhen auf der Entstehung eines positiven Druckgradienten auf der Düsenachse (siehe Kapitel 2, Flammenstabilisierung). Diese Zonen sind nahezu identisch im Fall ohne Anregung und bei 350 Hz

Anregungsfrequenz. Bei einer Anregung mit 50 Hz und 100 Hz hingegen wird die IRZ im Mittel ausgedehnt, der Anströmwinkel und die maximalen Geschwindigkeiten (positiv V<sub>y,max</sub> = 12 bis 14 m/s und negativ V<sub>y,min</sub> = -8 bis -6 m/s) werden kleiner, im Vergleich zu den beiden anderen Fällen. In der Flamme ohne Anregung der Strömung werden Maximalgeschwindigkeiten von V<sub>y,max</sub> = 19 m/s und Minimalgeschwindigkeiten von V<sub>y,min</sub> = -11 m/s detektiert.



Abb. 4-12 Standardabweichung der axialen isothermen Geschwindigkeit unter Anregung der Strömung.

Die veränderte Strömungssituation wird als direkte Folge der Anregung erkannt. Interessant ist hier die relative Resistenz der Strömung auf eine Anregung mit 350 Hz. Die Geschwindigkeitsfelder bei 0 Hz und 350 Hz Anregung sind nahezu identisch.

Die IRZ ist im Fall von 350 Hz etwas schmaler als bei 0 Hz. Die isothermen Geschwindigkeitsmessungen weisen auf eine frequenzabhängige Auswirkung auf das Strömungsfeld in der Brennkammer hin.

Abb. 4-12 zeigt die Schwankungswerte der isothermen axialen Geschwindigkeit in allen vier Fällen. Die größten Standardabweichungen  $\sigma_V$ y werden erwartungsgemäß zwischen der IRZ und die Hauptströmung, sowie der ÄRZ und die Hauptströmung beobachtet. Bei einer Anregungsfrequenz von 100 Hz und vor allem bei 50 Hz findet man die größten Werte ( $\sigma_V$ y<sub>max</sub> = 13 m/s), und hierbei werden die Bereiche wesentlicher Geschwindigkeitsschwankungen ausgedehnt. Dies kann zu einem verbesserten Austausch und dadurch erhöhter Homogenität führen. Im Fall von 50 Hz breitet sich der Bereich maximaler Schwankungswerte bis zur Düsenachse direkt über der Düse aus. Dies deutet auf eine Instabilität der Rückstromzone hin. Solches Verhalten lässt sich bei den anderen drei Fällen nicht beobachten.

Das Verhalten des Systems unter akustischer Anregung lässt sich auch mit Hilfe der in Abb. 4-13 dargestellten radialen Profile der isothermen axialen (unten) und radialen (oben) Geschwindigkeitskomponenten bei 10 mm HÜB und 30 mm HÜB analysieren. Die gezeigten Mittelwerte



bestätigen die Feststellung, dass sich die Strömung nahezu identisch bei der 0 Hz und 350 Hz Anregung verhält.

Abb. 4-13 Radiale Profile der isothermen gemittelten axialen (unten) und radialen (oben) Geschwindigkeitskomponenten auf HÜB = 10 mm und HÜB = 30 mm unter Anregung der Strömung.

In den radialen Geschwindigkeitsprofilen lassen sich jedoch Unterschiede feststellen. Sowohl bei HÜB = 10 mm, als auch bei HÜB = 30 mm zeigen die Geschwindigkeitskomponenten (axial und radial) eine Verschiebung der Maximalgeschwindigkeiten in Richtung der Brennkammerwand im Fall von einer Anregung mit 50 Hz und 100 Hz. Dieser Effekt lässt sich eindeutiger bei  $H\ddot{U}B > 10 \text{ mm}$  beobachten. Bei einer Anregung mit 100 Hz findet man die größte Verschiebung der Maximalwerte. Diese liegt z.B. im Fall von H $\ddot{U}B$  = 30 mm für die axiale Komponente bei X = 19 mm im Vergleich zu X = 14 mm für den nicht angeregten Fall. Die Verschiebung bei 50 Hz ist geringer und beträgt ca. 3 mm (X = 17 mm). Auf dieser Höhe konnte man für den 350 Hz Fall keine Verschiebung feststellen.

Die radiale Komponente zeigt ähnliches Verhalten, wobei die Verschiebung der Maximalwerte für den Fall von 100 Hz noch gravierender ist als bei der axialen Geschwindigkeitskomponente. Die Verlagerung der Maximalgeschwindigkeiten weiter nach außen zu den größeren Radien deutet auf einen erhöhten radialen Impuls bzw. verbesserten radialen Impulsaustausch im Vergleich zu 0 Hz und 350 Hz Anregung hin. Die Geschwindigkeitsprofile bei HÜB 30 mm zeigen, dass sich die negativen Geschwindigkeiten (Rückströmung) in den angeregten Fällen 50 Hz und 100 Hz im Vergleich zu 0 Hz und 350 Hz verschieben. Diese liegen für die innere Rezirkulationszone um 2 mm weiter in Richtung der Brennkammerwand bei X = 9 mm. Dies zeigt erneut, dass bei der Anregung der Strömung eine Ausdehnung der IRZ erfolgt und dass der Zusammenhang frequenzabhängig ist.



Abb. 4-14 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld ohne Anregung der Strömung.

Die Diskussion der Geschwindigkeitsmessungen hat sich bis jetzt auf die Mittelwerte beschränkt. Da es sich hier um ein schwingendes System handelt, wäre es sinnvoll, die gemessenen Geschwindigkeitsfelder bei jeder einzelnen Anregungsfrequenz phasenkorreliert darzustellen. Zu diesem Zweck werden die momentanen Geschwindigkeitsfelder aus jeder Periode für eine phasenkorrelierte Mittelung herangezogen. Die von der Anregungsfrequenz abhängige Periodendauer wird in zehn Phasen unterteilt, und die dazugehörigen Mittelwerte werden diskutiert.

Da der Fall ohne Anregung kein schwingendes System ist, werden alle 10 Phasen identisch aussehen. Aus diesem Grund werden die Geschwindigkeitsfelder für den 0 Hz Fall nicht in zehn Phasen unterteilt, sondern es wird eine Phase bzw. ein Feld (Abb. 4-14) dargestellt.



Abb. 4-15 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld phasenkorreliert bei einer Anregung mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer).

In Abb. 4-15 sind die isothermen Geschwindigkeitsfelder bei 350 Hz Anregung phasenkorreliert in zehn Phasen mit 285 µs Zeitschritten gezeigt. Bei einer Anregung der Strömung mit 350 Hz ist das System sehr resistent; die Geschwindigkeitsfelder sind in jeder Phase gleich und identisch mit dem 0 Hz Fall. Diese Ähnlichkeit in der Strömung deutet auf eine mögliche Ähnlichkeit auch in den Rußtendenzen in diesem System bei 0 Hz und 350 Hz hin. Wenn man die phasenkorrelierten Ergebnisse für die Fälle 50 Hz (2 ms Zeitschritt) und 100 Hz (1 ms Zeitschritt) betrachtet (Abb. 4-16 und Abb. 4-17), erkennt man den gravierenden Einfluss der Anregung auf



die isotherme Strömung. Die Geschwindigkeitsfelder unterscheiden sich in jeder Phase, die Geschwindigkeit fluktuiert in allen Zonen während der Periodendauer.

Abb. 4-16 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 50 Hz in zehn Phasen mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer).

Die Maximalgeschwindigkeiten zeigen eine Pulsation der Strömung und pendeln immer wieder zwischen der Düse und ca. 35 mm HÜB. Diese Fluktuationen wirken sich auch auf die Rezirkulationszonen aus, und vor allem bei 50 Hz Anregung können Phasen beobachtet werden, in denen die IRZ von der Düse weg transportiert wird. Diese verschwindet in manchen Phasen der



Periode im Bereich HÜB = 0 mm bis HÜB = 30 mm. Bei einer Anregung mit 100 Hz fluktuieren die Geschwindigkeitsmaximalwerte und deren Position vorwiegend in axialer Richtung.

Abb. 4-17 Isothermes axiales Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer).

Die IRZ hingegen bleibt in jeder Phase erhalten. Dies spricht für eine höhere Stabilität der Strömung, sowie für die Erhaltung einer Scherzone zwischen der IRZ und der ÄRZ. Die Scherzone ist entscheidend für den radialen Wärme- und Stoffaustausch in der Brennkammer. Die festgestellten Unterschiede in dem Verhalten der Strömung bei einer Variation der Anregungsfrequenz lassen die Vermutung zu, dass Differenzen zwischen den verschiedenen Anregungsfällen und den nicht angeregten Fall in den Prozessen der Rußbildung und -oxidation auftreten werden. Diese Vermutung kann durch weitere Untersuchungen in der reaktiven (reagierenden) Strömung bestätigt werden.

#### 4.3.3 Geschwindigkeitsverteilung in der reaktiven Strömung

In Abb. 4-18 werden die gemittelten (8000 Einzelbilder siehe Kapitel 3.2.2) axialen Geschwindigkeitsfelder bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz Anregungsfrequenz in der reaktiven Strömung für Abschnitt 1 (5-35 mm HÜB), Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) und Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm) dargestellt. Die detektierten Axialgeschwindigkeiten sind erwartungsgemäß insgesamt höher, unabhängig von der Anregungsfrequenz, als die bei der nicht reagierenden Strömung, und erreichen Werte von maximal V<sub>y,max</sub> = 29 m/s und minimal V<sub>y,min</sub> = -19 m/s.



Abb. 4-18 Gemitteltes (8000 Bilder) axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz Anregungsfrequenz in der reaktiven Strömung für Abschnitt 1 (5-35 mm HÜB), Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) und Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).

Durch die bei der Verbrennungsreaktion freigesetzte Wärme steigen die Temperaturen in der Brennkammer signifikant, folglich sinkt die Dichte. Da die Massenströme konstant gehalten werden, findet im reagierenden Fall eine Beschleunigung der Strömung statt. Dazu kommt eine Ausdehnung der IRZ im Vergleich zum isothermen Fall. Trotz alledem spiegeln sich die Erkenntnisse aus den isothermen Messungen bei den reaktiven Fällen wider. Die Flamme ist relativ resistent gegenüber einer Anregung mit 350 Hz und reagiert stark auf eine Anregungsfrequenz von 50 Hz oder 100 Hz. Die Auswirkung auf die reagierende Strömung findet man in der gesamten Brennkammer, sowohl in den düsennahen Bereichen als auch in den mittleren und höheren Zonen bis zum Auslass in die zweite Brennkammer wieder. Durch die unterschiedliche Geschwindigkeitsverteilung werden auch die Verweilzeiten in bestimmten Zonen der Brennkammer verändert. Die maximalen Geschwindigkeiten, positiv und negativ werden bei allen untersuchten Fällen in dem ersten düsennahen Abschnitt (HÜB 5-35 mm) beobachtet. Weiter stromabwärts findet man immer kleinere Geschwindigkeitsgradienten mit niedrigeren Geschwindigkeiten. Die Veränderungen in der Rückströmung (außen und innen) lassen sich eindeutiger in Abb. 4-19 erkennen und diskutieren. In diesem Diagramm werden die Bereiche mit gemittelten Werten der axialen Geschwindigkeitskomponente größer 0 m/s (rot) und kleiner 0 m/s (blau) dargestellt. Die merklich beeinflussten Fälle (50 Hz und 100 Hz) erfahren eine Veränderung der IRZ, verglichen mit dem nicht angeregten Fall, sowohl in axialer als auch in radialer Richtung.



Abb. 4-19 Gemitteltes (8000 Bilder) axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz Anregungsfrequenz (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).

Im ersten Abschnitt ist eine minimale Vergrößerung der IRZ bei 50 Hz und vor allem bei 100 Hz zu beobachten. Eine eindeutigere Vergrößerung ist in der ÄRZ im Fall von 350 Hz zu erkennen. Bei der Anregung mit 100 Hz im Abschnitt 2 ist die Vergrößerung der IRZ stärker ausgeprägt. Im zweiten Abschnitt (HÜB 35-65 mm) findet man die signifikanteste Ausdehnung der IRZ bei einer Anregung von 100 Hz vor. In diesem Fall reicht die IRZ schon ab einer HÜB > 52 mm bis r = 20 mm und weiter stromabwärts bis r = 23 mm. Im nicht angeregten Fall breitet sich die IRZ bis maximal r = 20 mm bei HÜB 65 mm aus. Bei den Anregungsfällen von 50 Hz und 350 Hz werden schmalere Rückstromzonen (maximale Ausdehnung bis r = 16 mm) für HÜB < 65 mm detektiert. Die Vergrößerung der IRZ bedeutet eine Erhöhung der Rezirkulation von heißen radikaltragenden Gasen in der Flammenregion und führt folglich zu einer Intensivierung des Brennstoffabbaus und der Homogenisierung (homogeneres Mischungs- und Temperaturfeld). Im Fall der 350 Hz Anregung ist das mittlere Geschwindigkeitsfeld zum größten Teil gleich mit dem des nicht angeregten Falls. Jedoch sorgt die Verjüngung der IRZ für eine weniger intensive Homogenisierung. Im dritten Abschnitt ist eine Verkleinerung der Rückstromzone bei 50 Hz und 100 Hz erkennbar. Ab einer HÜB > 68 mm bei 50 Hz und HÜB > 72 mm bei 100 Hz ist im Mittel keine Rezirkulation mehr zu beobachten. In diesem Abschnitt wird eine größere Rezirkulationszone bei 350 Hz als bei den restlichen Fällen detektiert.



Abb. 4-20 Standardabweichung des axialen Geschwindigkeitsfeldes bei 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz Anregungsfrequenz in der reaktiven Strömung für Abschnitt 1 (5-35 mm HÜB), Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) und für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).

Weitere wichtige Informationen liefert die Abb. 4-20. In diesem Diagramm werden die Felder der Standardabweichung der axialen Geschwindigkeit dargestellt. Die größten Schwankungen in der Geschwindigkeit entstehen zwischen der IRZ und der Hauptströmung sowie der ÄRZ und der Hauptströmung. Im ersten Abschnitt sind die Felder bei 0 Hz und 350 Hz identisch, und bei 50 Hz und 100 Hz beobachtet man eine Ausdehnung der Zone größer Schwankungen im achsnahen Bereich. Im zweiten Abschnitt ist die Standardabweichung höher bei 50 Hz und vor allem bei 100 Hz im Vergleich zu 0 HZ und 350 Hz. Dabei wird bei 350 Hz die Zone höherer Standardabweichung verkleinert. Im dritten Abschnitt findet man Bereiche mit mäßigen Schwankungen der axialen Geschwindigkeit bei 0 Hz und begrenzt in den äußeren Zonen (r > 28 mm) bei 100 Hz.

Im Folgenden werden phasenkorrelierte Ergebnisse präsentiert und ausführlich diskutiert. Abb. 4-21 zeigt das 2-dimensionale axiale Geschwindigkeitsfeld für Abschnitt 1 (5 bis 35 mm HÜB) der primären Brennkammer für den Fall ohne akustische Anregung. Die für eine drallstabilisierte Flamme typische innere und äußere Rezirkulationszone ist klar zu erkennen.



Abb. 4-21 Mittleres axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld - ohne Anregung der Strömung für Abschnitt 1 (HÜB 5-35 mm).

In Abb. 4-22 und Abb. 4-23 ist das axiale Geschwindigkeitsfeld in der reagierenden Strömung für Abschnitt 1 (5-35 mm HÜB) bei 50 Hz und 100 Hz Anregung dargestellt. Die gemittelten Aufnahmen sind phasenkorreliert für eine Periode von 20 ms mit 2 ms Zeitschritt bei 50 Hz, 10 ms mit 1 ms Zeitschritt bei 100 Hz und 2.85 ms mit 285 µs Zeitschritt bei 350 Hz (Abb. 4-24) dargestellt. Die Felder für den Abschnitt 2 (35-65 mm HÜB) sind in Abb. 4-25 für den 0 Hz, in Abb. 4-26 für den 50 Hz, in Abb. 4-27 für den 100 Hz und in Abb. 4-28 für den 350 Hz Fall gezeigt. Die Werte von Abschnitt 3 (65-102 mm HÜB) bei allen untersuchten Fällen sind in Abb. 4-29 bis Abb. 4-32 präsentiert. Das Strömungsfeld in den Fällen 50 Hz und 100 Hz ist sehr stark beeinflusst von der aufgezwungenen akustischen Luftzufuhranregung. Für den 50 Hz Fall kann man eine deutliche Fluktuation (qualitativ und quantitativ) des Strömungfeldes während einer Periode feststellen. Die innere Rezirkulationszone (IRZ) wird in manchen Phasen bei 50 Hz merklich abgeschwächt bzw. die negative axiale Geschwindigkeit nimmt stark ab. Dazu wird auch die Position der IRZ verändert und diese fluktuiert zwischen dem düsennahen Bereich HÜB < 5 mm



und weiter stromabwärts HÜB´s > 35 mm (Abb. 4-22 und Abb. 4-26). Zusätzlich, wird auch die Zone maximaler Axialgeschwindigkeit beeinflusst und diese variiert in jeder einzelnen Phase.

Abb. 4-22 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 50 Hz in zehn Phasen, mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 1 (HÜB 5-35 mm).



Abb. 4-23 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 100 Hz in zehn Phasen, mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer) für Abschnitt 1 (HÜB 5-35 mm).



Abb. 4-24 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 350 Hz, in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2,85 ms Periodendauer) für Abschnitt 1 (HÜB 5-35 mm).



Abb. 4-25 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, ohne Anregung der Strömung für Abschnitt 2 (HÜB 35-65 mm).

Bei einer Anregung der Luftzufuhr mit 100 Hz, wie bei dem 50 Hz-Fall, sieht man eine deutliche Änderung des Strömungfeldes (qualitativ und quantitativ) im Vergleich zum nicht angeregten Fall, die IRZ hingegen erscheint viel stabiler und bleibt bei 100 Hz in jeder Phase erhalten. Dies führt einerseits zu einer besseren Vermischung der Verbrennungsradikale mit den Frischgasen und andererseits zu einer merklich stabileren Flamme und die aerodynamische Flammenstabilisierung ist weiterhin gewährleistet.

Der Einfluss der akustischen Anregung (100 Hz) auf die ÄRZ ist deutlich erkennbar. Die äußeren Wirbelkerne sind verschoben von 10 mm HÜB und 25 mm radialer Position, zu 25 mm HÜB und 35 mm radialer Position, während jedes einzelnen Zyklus. Die Antwort der Strömung auf die akustische Anregung der Luftzufuhr ist eindeutig frequenzabhängig. Das Strömungsfeld bei einer 350 Hz-Anregung ist unbeeinflusst und bleibt in jeder Phase, sowohl qualitativ als auch quantitativ, erhalten. Im Gegensatz zu den 50 Hz- und 100 Hz-Fällen, bleibt die axiale Geschwindigkeit bei der 350 Hz-Anregung konstant und ist nahezu identisch mit der bei dem nicht angeregten Fall. Dieses Verhalten der Strömung lässt sich mit der frequenzabhängigen Änderung der Impedanz des untersuchten oszillierenden Systems erklären. Die akustische Impedanz wiederum ist abhängig von mehreren Faktoren, wie zum Beispiel der Geometrie der Brennkammer, der Düse und des Plenums, der Interaktion zwischen der Strömung und den Verbrennungsreaktionen, der thermischen Leistung des Brenners usw. Abhängig von der Impedanz des Systems kann man eine obere Frequenzgrenze bestimmen. Oberhalb dieser Grenze ist die Strömung nicht mehr in der Lage, den akustischen Fluktuationen zu folgen [63].



Abb. 4-26 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 50 Hz in zehn Phasen, mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 2 (HÜB 35-65 mm).



Abb. 4-27 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer) für Abschnitt 2 (HÜB 35-65 mm).



Abb. 4-28 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 µs Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer) für Abschnitt 2 (HÜB 35-65 mm).



Abb. 4-29 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, ohne Anregung der Strömung für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).

In den Abb. 4-33 bis Abb. 4-44 sind die phasenkorrelierten, gemittelten axialen Geschwindigkeitsfelder in der Flamme für alle Anregungsfrequenzen und alle HÜB's als Diagramme mit nur zwei Zonen dargestellt, eine blaue Zone für die axialen Geschwindigkeiten < 0 m/s und eine rote Zone für die axialen Geschwindigkeiten > 0 m/s.

Diese Darstellungsweise erlaubt eine verbesserte Erkennung der Rückstromzonen (IRZ und ÄRZ). Die Beobachtungen in den bisherigen Ergebnissen werden hier erneut bestätigt. Die hohe Resistenz des Strömungsfeldes bei 350 Hz Anregung lässt sich bei allen HÜB's erkennen. Dabei kann hier die starke Variation in der Position und der Größe der Rückstromzonen bei 50 Hz und vor allem bei 100 Hz verfolgt werden. Ein interessanter Unterschied zwischen den 50 Hz- und 100 Hz-Fällen ist das Auftreten einer Rückstromzone im oberen Bereich der Brennkammer (HÜB > 70 mm). Bei 50 Hz-Anregung ist diese Zone in der Hälfte aller Phasen nicht vorhanden und bei 100 Hz fehlt sie in 3 von 10 Phasen. In dem Fall ohne Anregung und bei 350 Hz findet man in jeder Phase eine Rückströmung bis HÜB = 83 mm. Im 100 Hz-Fall reicht diese Rückstromzone bis HÜB = 90 mm in manchen Phasen der Periode.

Eine weitere Informationsquelle bezüglich des Einflusses der akustischen Anregung auf die Strömungssituation in der Flamme stellt die präzise Betrachtung der Geschwindigkeit auf gezielt gewählten HÜB's dar. In den Abb. 4-45 bis Abb. 4-52 werden die Geschwindigkeitsprofile (axiale und radiale Komponente) in der reaktiven Strömung bei allen untersuchten Fällen und allen Phasen der Schwingungsfrequenz für HÜB = 10 mm, 30 mm und 60 mm dargestellt.

Die größten Schwankungen in den Geschwindigkeitsprofilen zwischen den einzelnen Phasen werden in blau und in rot, negativ und positiv gezeichnet. Diese Ergebnisse zeigen über alle Phasen stabile Geschwindigkeitsprofile für den 350 Hz-Fall, ähnlich wie bei dem nicht angeregten Fall. Dies gilt für alle gezeigten HÜB's für die axiale als auch für die radiale Geschwindigkeitskomponente. Dabei sind die absoluten Geschwindigkeiten für beide Fälle leicht unterschiedlich. Bei der Anregung mit 350 Hz werden etwas höhere axiale (HÜB = 10 mm) und niedrigere radiale (HÜB = 30 mm, 60 mm) Geschwindigkeiten gemessen.

Die Anregung der Strömung macht sich deutlich bemerkbar in den Fällen von 50 Hz und 100 Hz (Abb. 4-46, Abb. 4-47, Abb. 4-50 und Abb. 4-51). Diese Anregungsfrequenzen verursachen eine starke Fluktuation in den absoluten Geschwindigkeitswerten sowohl für die axiale als auch für die radiale Komponente. Die Geschwindigkeitsprofile variieren deutlich von Phase zu Phase, vor allem bei der 100 Hz-Anregung, und unterscheiden sich teilweise gravierend von den Profilen bei dem nicht angeregten Fall. Auf HÜB = 10 mm erreicht die maximale axiale Geschwindigkeit in manchen Phasen ca. 33 m/s mit 100 Hz Anregung, und bei 0 Hz Anregung liegt dieser Wert bei ca. 24 m/s. Die radiale Geschwindigkeit fluktuiert auch sehr stark und die Maximalwerte erreichen ca. 20 m/s (HÜB = 30 mm) für den 100 Hz-Fall. Ohne Anregung liegt dieser Wert lediglich bei maximal 15 m/s. Neben der deutlichen Veränderung der Geschwindigkeitsprofile (axial und radial) wird auch die Position des Auftretens der Maximalgeschwindigkeit in jeder Phase verschoben.

Die Geschwindigkeitsuntersuchungen zeigen eine zeitliche Instabilität der IRZ und ÄRZ. Die Vergrößerung der IRZ und der Zone hoher Geschwindigkeitsfluktuationen, verursacht von der erzwungenen akustischen Anregung der Strömung, könnte zu einer Verbesserung der Vermischung in der Brennkammer (homogeneres Gemisch) bei 50 Hz und besonders bei 100 Hz führen. Die Intensivierung der Durchmischung zwischen Brennstoff und Oxidator und zwischen freien Radikalen einerseits und den unverbrannten Kohlenwasserstoffen (UKW) und den Rußpartikeln andererseits, führt zwangsläufig zu kleineren Gradienten in den Konzentrationsfeldern. Ähnliches Verhalten kann man auch von dem Temperaturfeld bei Anregung erwarten.

Anscheinend findet die Verbrennung unter Anregung der Strömung unter quasi "vorgemischten" und "vorgewärmten" Bedingungen statt. Dabei ist die Auswirkung der Anregung frequenzabhängig. Dieses Verhalten der Strömung und die zu erwartende Kopplung mit der Verbrennung und den Prozessen der Rußbildung- und Oxidation hat höchstwahrscheinlich einen großen Einfluss auf die Rußentstehung in einer nicht vorgemischten Flamme bzw. auf die Rußemissionen aus der jeweiligen Verbrennungsanlage.

Unterhalb einer oberen Frequenzgrenze, die individuell und brennersystem-spezifisch ist, wird die Antwort des Strömungsfeldes auf akustische Anregung entscheidend beeinflusst. Die 100 Hz Anregungsfrequenz hat die Vermischungsbedingungen (Homogenität der Mischung) zwischen Brennstoff und Oxidator (Luft) positiv verändert. Daher sind kleinere Konzentrationsgradienten zu erwarten und die Verbrennung inklusive der Prozesse der Rußbildung und -oxidation würde sich dem vorgemischten Fall annähern.



Abb. 4-30 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 50 Hz in zehn Phasen mit 2 ms Zeitschritt (20 ms Periodendauer) für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).



Abb. 4-31 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 100 Hz in zehn Phasen mit 1 ms Zeitschritt (10 ms Periodendauer), für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).



Abb. 4-32 Axiales reagierendes Geschwindigkeitsfeld, phasenkorreliert bei einer Anregung mit 350 Hz in zehn Phasen mit 285 μs Zeitschritt (2.85 ms Periodendauer), für Abschnitt 3 (HÜB 65-102 mm).



Abb. 4-33 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-34 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-35 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 0 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-36 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-37 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-38 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 50 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-39 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).


Abb. 4-40 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-41 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 100 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-42 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 350 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 1 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-43 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 350 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 2 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-44 Phasenkorreliertes axiales Geschwindigkeitsfeld bei 350 Hz Anregungsfrequenz für Abschnitt 3 (> 0 m/s rote Zone, < 0 m/s blaue Zone).



Abb. 4-45 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 0 Hz Anregung.



Abb. 4-46 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 50 Hz Anregung.



Abb. 4-47 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 100 Hz Anregung.



Abb. 4-48 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der axialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 350 Hz Anregung.



Abb. 4-49 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 0 Hz Anregung.



Abb. 4-50 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 50 Hz Anregung.



Abb. 4-51 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 100 Hz Anregung.



Abb. 4-52 Radiale gemittelte Geschwindigkeitsprofile der radialen Geschwindigkeitskomponente für alle Phasen (HÜB 10 mm, 30 mm und 60 mm) in der reagierenden Strömung bei 350 Hz Anregung.

## 4.3.4 OH\*-Chemolumineszenz unter akustischer Anregung

Weitere wichtige Informationen liefern die phasenkorreliert gemittelten integralen OH\*-Chemolumineszenzmessungen, deren Ergebnisse einen tieferen Einblick und ein besseres Verständnis der Interaktion zwischen der Strömung und der Verbrennung unter Einwirkung von akustischen Oszillationen erlauben.



Abb. 4-53 Integrales OH\*-Chemolumineszenzfeld ohne Anregung der Strömung.

Das integrale OH\*-Lumineszenzfeld für den Fall ohne akustische Anregung der Strömung ist in Abb. 4-53 dargestellt. Die Ergebnisse der OH\* Chemolumineszenz bei einer Reihe von Anregungsfrequenzen sind phasenkorreliert in Abb. 4-54 (50 Hz), in Abb. 4-55 (100 Hz), und in Abb. 4-56 (350 Hz) präsentiert. Der Einfluss der Luftzufuhranregung ist erwartungsgemäß, ähnlich wie beim Strömungsfeld, sehr stark frequenzabhängig. Bei einer 50 Hz- und 100 Hz-Anregung ist die Änderung der Zone mit der höchsten OH\*-Lumineszenz am stärksten ausgeprägt. Aufgrund der akustischen Oszillation wird das OH\*-Feld gravierend deformiert, und dabei wird sowohl die Position maximaler OH\*-Lumineszenz, als auch derer Intensität verändert. Die OH\*-Chemolumineszenz wird als ein qualitativer Indikator der Reaktionszone und bzw. als Indikator der Wärmefreisetzung von der Flamme betrachtet (siehe Kapitel 3). Die beobachteten qualitativen und quantitativen Änderungen im OH\*-Feld, vor allem bei einer 100 Hz Anregung, führen unmittelbar zu Fluktuationen der Wärmefreisetzung in jeder einzelnen Phase der Oszillation. Dazu wird in diesem Fall die Zone hoher OH\*-Chemolumineszenz in manchen Phasenwinkeln merklich vergrößert. In einigen Phasen der 100 Hz-Anregung reicht die Zone hoher OH\*-Lumineszenz bis zu einer HÜB = 51 mm. Ohne Anregung der Strömung wird diese Zone bis maximal HÜB = 44 mm beobachtet. Wie man nach den Erkenntnissen über das Strömungsfeld erwarten kann, zeigt das System auch für die OH\*-Verteilung eine Resistenz bezüglich akustischer Luftzufuhranregung bei 350 Hz. Das OH\*-Chemolumineszenzfeld für den nicht-angeregten Fall und für die 350 Hz-Anregung ist nahezu identisch und daher tritt keine Änderung in der Größe, der Position und der Intensität des OH\*-Chemolumineszenzfeldes (siehe Abb. 4-53 und Abb. 4-56) auf.

Die OH-Radikale spielen eine sehr wichtige Rolle bei den heterogenen Rußoxidationsreaktionen (Reaktion 2.44, Kapitel 2) und daher bei der endgültigen Rußausbeute aus der Verbrennungsanlage. Die Felder der Rußkonzentration und OH\* in der Brennkammer zeigen auch in hier dargestellten Untersuchungen ein komplementäres Verhalten. Die Bereiche höherer Rußkonzentration sind durch die Erweiterung der Zone höherer OH-Konzentration und die damit verbundene Intensivierung der Rußoxidation stark eingeschränkt.

Die Untersuchung der Rußeigenschaften unter akustischer Anregung in der Flamme wird in den weiteren Abschnitten präsentiert und ausführlich diskutiert. Die OH\*-Untersuchungen zeigen eine reduzierte Abhebehöhe der Flamme bei Anregung (50 Hz und 100 Hz) der Strömung. In diesem Fall kann eine verbesserte Vorwärmung der Frischgase, bevor sie die Reaktionszone erreichen, erwartet werden.



Abb. 4-54 Integrales OH\*-Chemolumineszenzfeld bei 50 Hz Anregung der Strömung, phasenkorreliert mit 2 ms Zeitschritt.



Abb. 4-55 Integrales OH\*-Chemolumineszenzfeld bei 100 Hz Anregung der Strömung, phasenkorreliert mit 1 ms Zeitschritt.



Abb. 4-56 Integrales OH\*-Chemolumineszenzfeld bei 350 Hz Anregung der Strömung, phasenkorreliert mit 285 μs Zeitschritt.

## 4.3.5 Temperaturverteilung unter akustischer Anregung

Bei der Untersuchung von reaktiven Strömungen, wie im konkreten Fall in einer Verbrennungsanlage, ist die Kenntnis der Temperaturverteilung in der Brennkammer (Reaktor) von entscheidender Bedeutung. Die physikalischen Prozesse während der Verbrennung sowie die chemischen Reaktionen sind sehr stark temperaturabhängig.



Abb. 4-57 Interpoliertes mittleres Temperaturfeld ohne und mit einer akustischen Anregung der Strömung bei 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz.



Abb. 4-58 Radiales Temperaturprofil ohne und mit Anregung der Strömung für HÜB = 18 mm, 32 mm und 46 mm.

Dazu zählen auch alle Prozesse, die zur Rußbildung in der Brennkammer führen. Andererseits wird die Temperaturverteilung von den physikalischen und chemischen Prozessen in der Verbrennungsanlage beeinflusst. Daher wäre die Ermittlung der Auswirkung der akustischen Anregung auf die Strömung und die Verbrennung (u.a. Rußbildung und -oxidation) ohne eine Un-

tersuchung der Temperatur unvollständig. Wichtige Informationen erhalten wir von der Messung der Temperatur (siehe Kapitel 3) in der Flamme bei einer akustischen Anregung der Strömung.

In Abb. 4-57 sind die Temperaturfelder bei einer 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz-Anregungsfrequenz dargestellt. Die Bilder zeigen ein interpoliertes mittleres Temperaturfeld (in [K]) von allen Messpunkten bei sieben HÜB's, indem man bei HÜB = 18 mm anfängt. Die räumliche Auflösung beträgt 14 mm in axialer und 2.5 mm in radialer Richtung. Die mittleren Temperaturfelder bei 50 Hz und 100 Hz sind deutlich homogener als die für den nicht angeregten Fall. Besonders bei einer Anregung von 100 Hz sind die Bereiche "niedrigerer" Temperaturen signifikant reduziert. In der Flamme ohne Anregung kann man ein großes Gebiet (von HÜB 18 mm bis HÜB 102 mm und von der Düsenachse bis ca. 20 mm in radialer Richtung) relativ "niedriger" Temperatur feststellen. In der Zone bei HÜB = 18 mm und r = 2,5 - 12,5 mm und HÜB = 32 mm und r = 10 -15 mm sind relativ tiefe Temperaturen, unter 1000 K, zu beobachten. Das Temperaturfeld bei 350 Hz ist ähnlicher dem nicht oszillierenden Fall als bei den restlichen Anregungsfreuquenzen.

In Abb. 4-58, Abb. 4-59 und Abb. 4-60 sind die radialen Temperaturprofile bei allen sieben Messhöhen ohne und mit Anregung der Strömung dargestellt. Aus diesen Ergebnissen wird die reduzierende Wirkung der Anregung mit 100 Hz auf die radiale Temperaturgradiente ersichtlich. Es wird eine gleichmäßigere Temperaturverteilung in radialer Richtung beobachtet. Die minimalen Temperaturen in den düsennahen Bereichen sind in dem Fall von 100 Hz Anregung höher als in dem nichtangeregten Fall. Dabei sind die Temperaturen in den äußeren Flammenzonen bei allen HÜB's, mit der Ausnahme von HÜB = 18 mm, niedriger bei dem 100 Hz-Fall als im 0 Hz-Fall. Diese Beobachtung bestätigt die Homogenisierung der Temperaturverteilung anhand der Anregung vor allem mit 100 Hz. Bei einer Anregung mit 50 Hz sind die Temperaturgradienten bei HÜB = 46 mm und HÜB = 60 mm größer im Vergleich zum 100 Hz-Fall, wobei in HÜB = 60 mm die Gradienten sogar größer als im nicht-angeregten Fall sind. Die maximalen Temperaturen bei der 100 Hz-Anregung sind schon auf einer HÜB = 18 mm detektiert und zeigen Werte um ca. 100 K kleiner als die Maximalwerte in der Flamme ohne Anregung, wo diese auf einer HÜB = 32 mm beobachtet werden.

Die Verkleinerung der Temperaturgradienten bzw. die homogenere Verteilung der Temperatur in radialer Richtung bei einer Anregung mit 100 Hz lässt sich eindeutig bei einer HÜB = 46 mm, HÜB = 60 mm und HÜB = 74 mm erkennen. Es wurden Versuche auch mit einer Anregungsfrequenz von 200 Hz durchgeführt. Bei dieser Anregung kann man ähnliche Temperaturverteilung mit kleineren Temperaturgradienten, wie im 100 Hz – Fall feststellen. Im Weiteren wird auf die Diskussion von dem 200 Hz - Fall verzichtet, da sich keinen Mehrwert für die Arbeit und keine neuen Erkenntnisse dadurch ergeben würden. Im 350 Hz-Fall kann man trotz der relativ grosse Ähnlichkeit zum nicht angeregten Fall jedoch eine minimale Verbesserung der Homogenität der Temperaturverteilung in der Flamme feststellen.

Wenn man die Ergebnisse der OH\*-Chemolumineszenz mit den Temperaturfeldern vergleicht, wird man feststellen, dass die Abhebehöhe der Flamme bei einer Anregung mit 50 Hz und 100 Hz reduziert ist. Dieses Verhalten wird in diesen Fällen auch durch das Verschieben der Zone höherer Temperaturen weiter stromaufwärts bestätigt. Infolgedessen kommt es zu einer Vorwärmung des Brennstoffes und der Verbrennungsluft, die wiederum zu einer Intensivierung der Vermischung (u.a. höhere Diffusionskoeffizienten) und kleinere Konzentrationsgradiente führen kann.



Abb. 4-59 Radiales Temperaturprofil ohne und mit Anregung der Strömung für HÜB = 60 mm, 74 mm und 88 mm.

Die Untersuchung des technisch – relevanten Verbrennungssystems hat wesentliche, frequenzabhängige Veränderungen in dem Strömungs- und Temperaturfeld und in der Konzentrationsverteilung von OH\*-Radikalen (Flammenposition) aufgrund der akustischen Anregung gezeigt. Dabei hat die komplette Messkampagne ein verbessertes Verständnis der Mechanismen der Auswirkung von Schwingungen während der Verbrennung auf die Prozesse der Rußbildung und --oxidation erzielt.



Abb. 4-60 Radiales Temperaturprofil ohne und mit Anregung der Strömung für HÜB = 102 mm.

## 4.3.6 Rußeigenschaften unter akustischer Anregung der Strömung

Der starke Einfluss der akustischen Anregung der Luftzufuhr auf die Rußbildung und -oxidation in der Verbrennungsanlage lässt sich in den Rußeigenschaften eindeutig erkennen. In Abb. 4-61 und Abb. 4-62 sind die mittels der Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelten Mittelwerte des normierten Rußvolumenbruchs (f<sub>V</sub> [-]) und in Abb. 4-63 der Standardabweichung ( $\sigma_f_V$  [-]) des Rußvolumenbruchs unter Anregung der Strömung präsentiert. Der Mittelwert der Rußpartikelgrößenverteilung (rm [nm]) und der daraus resultierenden normierten Anzahldichte (N<sub>T</sub> [-]) bei den untersuchten Anregungsfrequenzen sind in Abb. 4-64 und Abb. 4-65 dargestellt.

Die Abbildungen zeigen interpolierte Felder (Zwei-Farben zeitaufgelöste LII, siehe Kapitel 3) der experimentell ermittelten Rußeigenschaften. Wie im Kapitel 3 diskutiert, sind phasenkorrelierte Messungen der Rußeigenschaften mit dem vorhandenen Messsystem wegen der begrenzten Wiederholungsraten des Nd:YAG Lasers (10 Hz) und des CCD-Chips (0,5 fps) der Streak-Kamera nicht realisierbar.

Zusätzlich zu der Darstellung als interpolierte Felder werden die radialen Profile der Rußeigenschaften über alle sieben HÜB's einzeln präsentiert. Für den Rußvolumenbruch sind diese Werte der Abb. 4-66, Abb. 4-67 und Abb. 4-68 zu entnehmen. Das radiale Profil der Mittelwerte der Rußpartikelgrößenverteilung ist in Abb. 4-69, Abb. 4-70 und Abb. 4-71 dargestellt.

Es zeigt sich, abhängig von der Anregungsfrequenz, eine merkliche Reduzierung des mittleren Rußvolumenbruchs und des mittleren Rußpartikelradius in der unter Sauerstoffmangel betriebenen Brennkammer der RQL- Verbrennung (siehe Kapitel 2).

Die Zone mit dem höchsten Rußvolumenbruch (höchste Konzentration) in der Flamme befindet sich in allen untersuchten Fällen, mit Ausnahme von 350 Hz, auf HÜB = 60 mm und r = 0-10 mm. Der Rußvolumenbruch nimmt in allen Bereichen der Flamme um ca. 50 %, bei einer Anregungsfrequenz von 100 Hz, ab. Bei noch höheren Frequenzen wie z.B. 200 Hz sowie bei niedrigeren Anregungsfrequenzen (50 Hz) wird die Antwort des Systems schwächer und die Reduktion der fv- Werte ist nicht so stark ausgeprägt (Abb. 4-61, Abb. 4-66, Abb. 4-67, Abb. 4-68). Bei einer Anregung mit 350 Hz ist der Rußvolumenbruch, im Vergleich zu dem nicht-angeregten Fall, sogar etwas erhöht. Diese Beobachtung ist besonders gut erkennbar bei HÜB > 70 mm und in den äußeren Bereichen der Brennkammer (Abb. 4-61, Abb. 4-66, Abb. 4-67, Abb. 4-68). Aufgrund der akustischen Anregung wird auch die Rußpartikelgrößenverteilung signifikant beeinflusst. In den Anregungsfällen 50 Hz, 100 Hz und 200 Hz kann man eine Verkleinerung der Rußpartikel feststellen (Abb. 4-64).

Eine genaue Betrachtung erlaubt die Darstellung der radialen Profile des mittleren Rußpartikelradius (Abb. 4-69, Abb. 4-70, Abb. 4-71). Bei einer Anregung der Luftzufuhr mit 350 Hz, bei der keine nennenswerte Beeinflussung des Strömungsfeldes auftritt, kann auch keine signifikante Änderung der Partikelgrößenverteilung beobachtet werden. Bei der Anregung wird die Partikelanzahldichte stark reduziert, und vor allem bei 100 Hz nimmt diese in den äußeren Flammenregionen eindeutig ab (Abb. 4-65). In dem 350 Hz-Fall wird sogar eine Erhöhung der Anzahldichte aufgrund der akustischen Anregung festgestellt (Abb. 4-65).

Die Berücksichtigung aller dargestellten Ergebnisse bezüglich der Rußeigenschaften erlaubt die Bestimmung und Lokalisierung der im Rahmen der Rußbildungs- und oxidationsprozesse dominierenden Teilprozesse in der Brennkammer.

Wie bereits im theoretischen Teil erläutert (siehe Kapitel 2), deutet eine Zone, die durch eine hohe Anzahldichte (Abb. 4-65) und gleichzeitig kleine Partikelradien (Abb. 4-64) charakterisiert wird, auf eine Dominanz der Prozesse der Rußpartikelbildung ("junger" Ruß) hin. Diese Zone in der Flamme wird signifikant durch die Anregung der Strömung, und zwar frequenzabhängig, beeinflusst. In der nicht-angeregten Flamme findet man diesen Bereich auf einer HÜB = 74-88 mm und r = 0-5 mm und zusätzlich bei HÜB = 88 mm und r = 10-15 mm. Die Rußentstehungszone wird bei der Anregung mit 50 Hz, 100 Hz und 200 Hz auf niedrigere HÜB's (HÜB = 60-74 mm) verschoben.

Aufgrund der Rückströmung, den Stromlinien folgend, in diesem achsnahen Bereich wird die Rußentstehung bei diesen Anregungsfrequenzen verzögert und tritt zu einem späteren Zeitpunkt als in dem Fall ohne Anregung auf. Die Größe dieser Zone nimmt nur bei der Anregung mit einer Freuqenz von 100 Hz (r = 0-2.5 mm) ab, und bei allen anderen Anregungsfrequenzen kann eine Ausdehnung beobachtet werden.

Weitere Rußentstehungsbereiche können auch bei HÜB = 74-88 mm und r = 10-12,5 mm für den 100 Hz-Fall, bei HÜB = 60-102 mm, r = 10-15 mm für den 50 Hz-Fall und bei HÜB = 60-102 mm und r = 7.5-17.5 mm für den 200 Hz-Fall beobachtet werden. Bei einer Anregung mit 350 Hz wird die Zone der dominierenden Rußpartikelentstehung in breiten Bereichen der Flamme (HÜB = 74-102 mm und r = 0-20 mm) erkannt.

Eine Zone, die durch einen hohen Rußvolumenbruch (Abb. 4-61) und große Partikeln (Abb. 4-64) bei gleichzeitiger Abnahme der Anzahldichte (Abb. 4-65) charakterisiert ist, deutet auf eine Dominanz der Prozesse der Partikelkoagulation hin. In dem nichtangeregten Fall und bei einer Anregung mit 350 Hz befindet sich dieser Bereich in der Flamme auf HÜB < 55 mm und r = 0-12.5 mm. Bei einer Anregung mit 50 Hz, 100 Hz und 200 Hz ist dieser Bereich begrenzt (HÜB < 50 mm und r = 0-10 mm) und auf niedrigere HÜB's verschoben.



Abb. 4-61 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermitteltes mittleres normiertes Rußvolumenbruchfeld (f<sub>v</sub>) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme.



Abb. 4-62 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermitteltes mittleres normiertes Rußvolumenbruchfeld (f<sub>v</sub>) unter Anregung mit halber Amplitude (für 50 Hz) in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme.



Abb. 4-63 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Standardabweichung des Rußvolumenbruchs unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme.



Abb. 4-64 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme.



Abb. 4-65 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte mittlere normierte Anzahldichte (NT) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme.



Abb. 4-66 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter Rußvolumenbruch (f<sub>v</sub>) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 46 mm und HÜB = 60 mm.



Abb. 4-67 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter Rußvolumenbruch (f<sub>v</sub>) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 74 mm und HÜB = 88 mm.



Abb. 4-68 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer normierter Rußvolumenbruch (f<sub>v</sub>) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 102 mm.

Die gemessenen Rußeigenschaften in der Flamme zeigen, dass die Region nahe der Düsenachse eine entscheidende Rolle bezüglich der Rußpartikelbildung und der Koagulation spielt. Gerade diese achsnahe Region, gekoppelt mit der IRZ, ist gravierend durch die erzwungenen akustischen Oszillationen des Strömungsfeldes beeinflusst. Am "günstigsten" in Hinsicht auf eine Reduzierung der Rußentstehung und der Rußemission von der Flamme ist offensichtlich eine Anregung der Strömung mit einer Anregungsfrequenz von 100 Hz. Bei einer Anregung mit 50 Hz oder 200 Hz ist die Hemmung der Rußentstehung und der Rußemission nicht so stark ausgeprägt.

Neben den bereits diskutierten Prozessen spielt die Rußoxidation eine außerordentlich wichtige Rolle für die Rußemission aus jeder Verbrennungsanlage. Die durch Rußoxidationsprozesse dominierte Zone in der Flamme kann durch eine Reduzierung der Anzahldichte (Abb. 4-65) und Vergrößerung des Mittelwertes der Rußpartikelgrößenverteilung (Abb. 4-64) bei gleichzeitiger Abnahme des Rußvolumenbruchs (Abb. 4-61) charakterisiert werden. Die Ausdehnung und die Position der "Rußoxidationszone" sind merklich durch die Luftzufuhranregung verändert. Dies ist vor allem bei 100 Hz stärker ausgeprägt, wo man die größte Rußoxidationszone von allen Fällen beobachten kann. Diese Zone ist für den nicht angeregten Fall bei allen HÜB's ab einer radialen Position r > 25 mm lokalisiert. Bei 100 Hz Anregung beginnt diese Zone deutlich näher an der Düsenachse (r > 15 mm).



Abb. 4-69 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 46 mm und HÜB = 60 mm.



Abb. 4-70 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 74 mm und HÜB = 88 mm.

Unter Berücksichtigung aller dargestellten Ergebnisse von der mittleren Rußpartikelgrößenverteilung (Abb. 4-64) und der normierten Anzahldichtefunktion (Abb. 4-65) kann die Detektion größerer Partikeln im äußeren Flammenbereich bei einer Anregung mit 100 Hz erklärt werden. Die in den äußeren Bereichen entstandenen Muster stellen eine schmale Zone in der Brennkammer dar, in der man eine geringe Anzahl größer Rußpartikeln vorfinden kann. Diese Partikeln bleiben erhalten und haben die Oxidationsprozesse überstanden, im Gegensatz zu den kleineren Rußpartikeln, die vollständig oxidiert worden sind.

In Abb. 4-62 ist das mittlere normierte Rußvolumenbruchfeld unter Anregung der Strömung mit einer Frequenz von 50 Hz bei einer halben Amplitude dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, wie erwartet, eine deutlich weniger ausgeprägte Reduzierung der Rußkonzentration im Vergleich zur Anregung bei 50 Hz und voller Amplitude. Die Flamme befindet sich bei der Halbierung der Anregungsamplitude in einem Zustand zwischen dem nicht angeregten und dem 50 Hz - Fall. Die Rußeigenschaften werden daher nicht nur frequenzabhängig von der Anregung, sondern erwartungsgemäß auch eindeutig amplitudenabhängig beeinflusst.

Abb. 4-63 zeigt die mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelte Standardabweichung des Rußvolumenbruchs bei allen untersuchten Anregungsfrequenzen. Verglichen mit dem nicht angeregten Fall, sind die Bereiche höherer Standardabweichung des Rußvolumenbruchs bei 50 Hz und besonders bei 100 Hz in Richtung der Düsenachse verschoben. Dies zeigt eine Instabilität in der Rußkonzentration tiefer in der Flamme und nicht nur in den äußeren Bereichen. Bei einer Anregung mit 350 Hz kann keine signifikante Änderung in der Standardabweichung ( $\sigma_f_V$  [-]) des Rußvolumenbruchs festgestellt werden.



Abb. 4-71 Mittels Zwei Farben-zeitaufgelösten-LII ermittelter mittlerer Rußpartikelradius (rm) unter Anregung der Strömung in einer turbulenten nicht-vorgemischten Drallflamme auf HÜB = 102 mm.
#### 4.3.7 Rußvorläufermoleküle PAK's unter akustischer Anregung

Die frequenzabhängigen Veränderungen im Verbrennungssystem, die durch die akustische Anregung der Strömung verursacht werden, beeinflussen die Rußeigenschaften (Konzentration, Partikelgröße, Anzahldichte) in der untersuchten nicht vorgemischten turbulenten Drallflamme wesentlich. Die Rußeigenschaften sind als Endergebnis einer Reihe physikalischer und chemischer Prozesse zu betrachten (siehe Kapitel 2). Diese Prozesse wiederum sind Funktionen der lokalen Bedingungen wie bspw. Temperatur, Verweilzeit, lokale Luftzahl, Spezieskonzentration. Durch die Anregung werden die Bedingungen in der Brennkammer offensichtlich stark verändert. Diese Veränderungen haben entscheidenden Einfluss auf die Rußbildung sowie Rußoxidation. Zur Diskussion dieser Frage ist die Kenntnis der Konzentration wichtiger Spezies wie polyzyklische Kohlenwasserstoffe (PAK), die als Rußvorläufermoleküle gelten, notwendig. Die Untersuchung des Verbrennungssystems bezüglich der Konzentration von PAK's wird mittels Probenahme und anschließender Analyse mit GC/MS realisiert (siehe Kapitel 3).



Abb. 4-72 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Naphthalin auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).

In Abb. 4-72 ist die normierte Konzentration von Naphthalin auf der Düsenachse für eine HÜB = 32 mm, 46 mm, 60 mm, 74 mm, 88 mm und 102 mm, bei einer Anregung der Strömung mit 0 Hz, 50 Hz, 100 Hz und 350 Hz, dargestellt. Die Normierung wird mit dem Maximalwert unter allen detektierten Spezies durchgeführt. In dieser Untersuchung liegt die maximale Konzentration bei Naphthalin. Diese Werte für die Konzentration sind lediglich als qualitativ zu betrachten und sind die Flächenintegrale unter dem Peak im Chromatogramm für jede Verbindung. Es ist ein eindeutig frequenzabhängiger Einfluss in der Verteilung und Höhe der Naphthalin Konzentration festzustellen. Bei 100 Hz Anregung und ab einer HÜB von 74 mm wird deutlich weniger Naphthalin im Vergleich zum nicht angeregten Fall detektiert. Die Konzentration von Naphthalin bei HÜB = 74 mm ist für den 100 Hz-Fall über 40 % kleiner. Gerade bei dieser Höhe findet man die maximale Naphthalin-Konzentration für den 0 Hz- und 350 Hz-Fall. Dieses Maximum ist durch die Anregung mit 50 Hz und 100 Hz verschoben und befindet sich, näher an der Düse, auf HÜB = 60 mm. Ein kleiner Anstieg der Naphthalin-Konzentration lässt sich bei 100 Hz, HÜB = 60 mm und deutlicher Anstieg bei HÜB 46 mm (+ ca. 100 %) verglichen mit dem 0 Hz-Fall beobachten. Wenn man die Konzentrationswerte über allen HÜB's berücksichtigt, wird man feststellen, dass im 100 Hz-Fall insgesamt weniger und im 350 Hz-Fall mehr Naphthalin, im Vergleich zum nicht angeregten Fall, beobachtet wird.

Die akustische Anregung der Strömung mit Frequenzen < 350 Hz und die dadurch verursachten Veränderungen in den Bedingungen der Brennkammer führen eindeutig zu einer Hemmung der Prozesse der Naphthalin Bildung. Die Umverteilung der Konzentration von Naphthalin und die Verschiebung der Maximalwerte in Richtung der Düse können von entscheidender Bedeutung für die Rußpartikelbildung sowie für die anschließenden heterogenen Prozesse des Oberflächenwachstums sein. In der untersuchten Flamme entsteht auf der Düsenachse eine Rückströmung. Daher ist die Verschiebung der Maximalkonzentration von Naphthalin auf kleinere HÜB auch als eine Verschiebung zu einem späteren Zeitpunkt zu betrachten. Das Naphthalinmolekül ist einer der wichtigsten Bausteine bei dem Wachstum größerer PAK's und Rußpartikeln. Daher würde eine *spätere* Anwesenheit von Naphthalin in ausreichend hoher Konzentration zwangsläufig zu einer Verschiebung der Rußentstehung und des intensiven Rußoberflächenwachstums *zu späteren* Zeiten führen. In diesem angeregten Fall (100 Hz) kann man auch von einer Reduzierung der Verweilzeit für Rußpartikeln in der Brennkammer sprechen.

Der Einfluss auf die Verweilzeit, bei gleichzeitiger Intensivierung der Oxidationsprozesse (Ausdehnung der Zone hoher OH-Radikale-Konzentrationen) und die Reduzierung der Naphthalin-Konzentration in dem oberen Teil (HÜB > 60 mm) der primären Brennkammer, korreliert sehr gut mit der beobachteten Reduzierung der Rußkonzentration und der Rußpartikelgröße bei im Fall der Anregung der Strömung mit einer Frequenz von 100 Hz.

In Abb. 4-73 ist die normierte Konzentration von Acenaphthalin, einem weiteren wichtigen PAK, auf der Düsenachse dargestellt. Die Konzentration von Acenaphthalin ist insgesamt niedriger als die von Naphthalin. Eine Anregung mit 100 Hz verursacht, ähnlich wie beim Naphthalin, eine Reduktion der Konzentration von Acenaphthalin bei allen HÜBs, mit Ausnahme von HÜB = 46 mm, wo diese von 10 % auf 20 % (normiert auf dem Maximalwert) steigt. Dabei wird die Höhe

mit der maximalen Konzentration, verglichen mit dem nicht-angeregten Fall, unverändert. Im 50 Hz-Fall kann eine Zunahme bei HÜB = 46 mm und HÜB = 102 mm und bei den restlichen HÜB's eine Abnahme der Konzentration, im Vergleich zum 0 Hz-Fall, beobachtet werden. Wenn die Strömung mit 350 Hz angeregt wird, verändert sich die Konzentration von Acenaphthalin lediglich bei HÜB = 74 mm (Abnahme) und HÜB = 102 mm (Zunahme). Auf den anderen Höhen ist diese identisch mit der bei dem nicht angeregten Fall. Auf der Düsenachse werden auch weitere PAK's detektiert.



Abb. 4-73 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Acenaphthalin auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).

Die Konzentrationen von Indan (Abb. 4-74) und Inden (Abb. 4-75) sind wesentlich niedriger als die von Naphthalin und Acenaphthalin. Bei einer Anregung mit 100 Hz erkennt man für Indan eine Abnahme der Konzentration bei HÜB = 102 mm und eine Zunahme bei HÜB = 46 mm. Im 50 Hz-Fall steigt die Indan-Konzentration auch bei HÜB = 74 mm. Im 350 Hz Fall nimmt die Konzentration von Indan bei HÜB = 88 mm und HÜB = 102 mm zu, und bei HÜB = 74 mm ist eine Reduktion zu beobachten. Die Anregung mit 100 Hz verursacht eine deutlichere Abnahme der Konzentration für Inden. Ab einer HÜB > 60 mm sinkt diese und bei HÜB = 60 mm kann kein Inden festgestellt werden. Für die 350 Hz-Flamme wird ein mit dem 0 Hz-Fall identisches Verhalten - mit Ausnahme von HÜB = 46 mm und HÜB = 102mm - beobachtet.

Die maximale Inden-Konzentration liegt für den 0 Hz- und 350 Hz-Fall bei HÜB = 74 mm. Bei der Anregung mit 50 Hz und 100 Hz wird dieser Maximalwert in Richtung der Düse verschoben und liegt bei HÜB = 46 mm. Größere PAK's, wie Pyren und Benzo[ghi]fluoranthen konnten auch nachgewiesen werden. Die normierten Konzentrationen sind jeweils in Abb. 4-76 und Abb. 4-77 dargestellt. Die Tendenz zur Reduzierung der Konzentration ab HÜB > 60 mm bei der Anregung mit 100 Hz bleibt erhalten. Eine Ausnahme findet man bei HÜB = 102 mm für die Benzo[ghi]fluoranthen-Konzentration. Eine wesentliche Abnahme in der Konzentration von Pyren bei einer Anregung mit 100 Hz kann in den meisten untersuchten Höhen (ausser bei HUB = 46 mm, ähnlich wie bei Naphthalin) auf der Düsenachse festgestellt werden. Die höchste Konzentration von Pyren verschiebt sich im oberen Teil der Brennkammer auf HÜB = 88 mm. Für den 50 Hz-Fall wird die maximale Pyren-Konzentration auf HÜB = 102 mm beobachtet. Im Fall einer Anregung mit 350 Hz werden mit dem nicht angeregten Fall identische oder höhere Konzentrationen für Pyren sowie für Benzo[ghi]fluoranthen festgestellt. Eine Ausnahme macht hier die Pyren-Konzentration (350 Hz) bei HÜB = 88 mm. Bei der GC/MS – Analyse konnte ein weiterer PAK, wenn auch in sehr niedrigen Konzentrationen, detektiert werden. Es handelt sich hier um in dem oberen Teil der Brennkammer (HÜB > 70 mm) beobachteten Cyclopenta[cd]pyren (Abb. 4-78). Ohne eine Anregung der Strömung wird diese Spezies auf HÜB = 74 mm und HÜB = 102 mm detektiert. Bei einer Anregung mit 350 Hz steigt die Konzentration von Cyclopenta[cd]pyren auf einer HÜB = 74 mm und HÜB = 88 mm. Auf HÜB = 102 mm ist diese niedriger als im 0 Hz-Fall.



Abb. 4-74 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Indan auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).



Abb. 4-75 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Inden auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).

Bei der Anregung mit 50 Hz und 100 Hz kann diese Spezies allein auf HÜB = 74 mm nachgewiesen werden. Im 100 Hz-Fall sinkt die Cyclopenta[cd]pyren-Konzentration um ein Drittel, und beim 50 Hz-Fall hingegen verdoppelt sich diese im Vergleich zum nicht-angeregten Fall.

Die Ergebnisse der GC/MS-Analyse haben keine weiteren größeren PAK's zeigen können. Das heißt aber nicht, dass solche größere Spezies unter den Bedingungen in der Brennkammer nicht existieren. Ein Nachteil der eingesetzten Probenahmemethode (siehe Kapitel 3) ist, dass größere Moleküle, die auch eine höhere Siedetemperatur besitzen, schon in der Leitung vor der dafür installierten Kühlfalle kondensieren können. Daher können diese Spezies bei der nachfolgenden Analyse des Kondensates der Kühlfalle mit GC/MS nicht nachgewiesen werden.

Die detektierten PAK's, wie Naphthalin, Acenaphthalin, Indan, Inden, Pyren, Benzo[ghi]fluoranthen und Cyclopenta[cd]pyren, die eine entscheidende Rolle in den Prozessen der Rußpartikelbildung und des Oberflächenwachstums spielen, ermöglichen tiefere Einblicke in diese Prozesse unter Einwirkung einer Anregung der Strömung. Es kann gezeigt werden, dass die akustische Anregung eine gravierende Auswirkung auf die Konzentration von PAK's in der Flamme hat. Dazu ist der Einfluss auf die Spezieskonzentration frequenzabhängig, und somit kann sich die Anregung - je nach Frequenz - positiv oder negativ auf die Rußbildung im Verbrennungssystem auswirken. Bei allen detektierten PAK's hat die Anregung mit 100 Hz zu einer deutlichen Reduzierung der Konzentration dieser Spezies geführt.



# Abb. 4-76 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Pyren auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).

Diese Erkenntnis deutet darauf hin, dass die akustische Anregung schon auf der Etappe der PAK–Bildung "angreift". Dies lässt sich auf die veränderten Bedingungen in der Brennkammer zurückführen. Die erhöhte Homogenität des Temperaturfeldes und der Stöchiometrie (Brennstoff-zu-Luft-Verhältnis) unter Einwirkung der Anregung mit 100 Hz hat eine hemmende und verzögernde Wirkung auf die temperatur- und eduktenkonzentrationsensiblen PAK–Bildungsund Wachstumsreaktionen. Diese Reaktionen werden im Falle von Naphthalin, Inden und Pyren so inhibiert, dass die maximale Konzentration nicht nur niedriger, verglichen mit dem nichtangeregten Fall, sondern auch zu einem späteren Zeitpunkt auftritt. Bei der Verbrennung werden die großen Brennstoffmoleküle durch Pyrolyse- und Oxidationsreaktionen in kleinere (kurzkettige) Spezies gespalten. Diese Spaltung findet an der relativ schwachen C – C Bindung statt. Dabei entstehen kleine Radikale, deren Abbauraten so hoch sind, dass ungesättigte Kohlenwasserstoffe gebildet werden [2, 3, 89, 90]. Diese können dann weiter zu polyzyklischen Spezies, die als Rußvorläufermoleküle gelten, reagieren und daher auch zu Ruß führen. Entlang dieser Prozessreihe ist der geschwindigkeitsbestimmende Schritt die Bildung des ersten aromatischen Ringes. Mittels Polymerisationsreaktionen werden aus den kleinsten aromatischen Verbindungen große gasförmige PAK's gebildet. Diese planaren Moleküle führen über Koagulationsprozesse zur Entstehung von dreidimensionalen Strukturen, die als Rußkeime definiert werden (siehe Kapitel 2). Die nach der Rußpartikelgründung gebildeten kleinsten Rußteilchen können weiter durch heterogene Oberflächenreaktionen oder physikalische Anlagerung wachsen. Als Wachstumsspezies werden neben C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> auch die PAK–Moleküle betrachtet [2, 3]. Daher sind die PAK's absolut unentbehrlich auf dem Weg zur Rußkeimbildung sowie zum Rußoberflächenwachstum.



Abb. 4-77 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Benzo[ghi]-fluoranthen auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).



Abb. 4-78 Axiale normierte Konzentrationsverteilung von Cyclopenta[cd]pyren auf der Düsenachse unter Anregung der Strömung (GC/MS Untersuchung).

Der Vergleich der Zeitskalen der Rußbildung mit den turbulenten Zeitskalen ermöglicht ein besseres Verständnis der Wirkungsmechanismen der Turbulenz auf die Rußbildung im untersuchten Verbrennungsprozess. Das turbulente Zeitmaß  $\tau_L$  (Large Eddy turnover Time) wird mit dem Quotienten aus dem geometriebezogenen Längenmaß L (halber Düsendurchmesser) und dem RMS-Wert u' der Geschwindigkeit gebildet. Im Fall der grössten RMS-Werte (in der Scherschicht) wird ein turbulentes Zeitmaß  $\tau_L = 1,4$  ms berechnet, das im Vergleich zum Rußbildungszeitmaß ( $\tau_{soot}$  ca. 50 ms) um das Mehrfache kleiner ist, daher kann die durch die Anregung der Strömung verursachte Turbulenzintensivierung nicht direkt auf die Rußbildung wirken,d.h., die Rußbildung wird nicht direkt von der Turbulenz inhibiert.

Der Wirkungsmechanismus der Anregung sollte dann über direkten Einfluß auf andere Spezies wie z.B. Rußvorläufer oder Rußwachstumsreaktanten erfolgen. Die Rußvorläufermoleküle PAK's werden schnell gebildet und weisen dabei kleinere Zeitskalen ( $\tau_{PAK} < 10$  ms) als die Rußbildung auf. Die naheliegenden Zeitskalen der Turbulenz und der PAK-Bildung ermöglichen eine direkte Beeinflussung der Turbulenzintensivierung auf die Bildung von Rußwachstumsspezies und Rußvorläufer bzw. der Bildung von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen. Als

möglicher Wirkungsmechanismus der Anregung auf die Rußeigenschaften kann der direkte Einfluß auf die PAK-Konzentration in Erwägung gezogen werden. Die PAK's spielen eine entscheidende Rolle bei der Rußentstehung in der Verbrennung. Einerseits dienen Sie als direkte Rußvorläufermoleküle, die beim Erreichen einer ausreichend hohen Masse und unter Entstehung von 3-dimensionalen Strukturen die ersten Rußkeime "junger Ruß" bilden (siehe Kapitel 2), d.h. jede Änderung der PAK's-Konzentration wird direkte Folgen auf die Prozesse der Rußkeimgründung bzw. auf die Konzentration von "jungem Ruß" haben. Andererseits besitzen die PAK-Moleküle eine hohe thermodynamische Stabilität und Langlebigkeit, sodass diese nicht nur für die Phase der Rußkeimbildung entscheidend sind, sondern auch das spätere Rußwachstum bestimmen können. Das Rußwachstum wird mittels heterogener Oberflächenreaktionen, bei denen als Kohlenstoffquelle die Gasphase dient, realisiert. Diese Phase verläuft auch nach dem HACA-Mechanismus, und als Hauptreaktanten, neben C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, können die PAK's betrachtet werden. Frühere Untersuchungen haben gezeigt, dass die Kollisionseffizienz der PAK-Rußoberflächenreaktion ca. 5000 Mal höher als die C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>–Rußoberflächenreaktion ist [123]. Die wesentlich höhere Reaktivität der PAK's stellt einen schnelleren Mechanismus des Kohlenstofftransports von  $C_2H_2$  zum Ruß dar, als die direkte  $C_2H_2$ –Ruß–Reaktion.

Die durch die Anregung der Strömung mit 100 Hz verursachte Hemmung der PAK–Bildung wird dann zwangsläufig zur Inhibierung der Rußpartikelbildung und auch zu einem Rückgang der Wachstumsrate (Verarmung an Wachstumsspezies) der schon entstandenen Partikeln führen. Durch die Prozesse des Rußoberflächenwachstums wird die Hauptmasse des in der Flamme entstehenden Rußes gebildet. Das Abklingen des Rußwachstums aufgrund der akustischen Anregung mit 100 Hz wird nicht nur zu einer Reduktion der Rußpartikelgröße, sondern auch zum allgemeinen Rückgang der Rußmasse in dieser Flamme führen. Diese Schlussfolgerungen korrelieren sehr gut mit den Ergebnissen der Rußeigenschaften unter Einwirkung einer Anregung der Strömung.

Die Berücksichtigung aller Ergebnisse dieser Arbeit führt zu folgender Hypothese:

Der beobachtete frequenz- und amplitudenabhängige Einfluss der erzwungenen akustischen Anregung der Strömung auf die Prozesse der Rußbildung und Oxidation ist eine Folge der signifikanten Änderung des Geschwindigkeits- und Temperaturfeldes, sowie der OH-Konzentration. Diese Zusammenhänge sind am stärksten ausgeprägt innerhalb der für die Rußbildung (ca. 50 ms) relevanten Zeitskalen.

Aufgrund der akustischen Anregung der Luftzufuhr werden die Konzentrationsgradienten reduziert, was im Endeffekt eine verbesserte Vermischung von Brennstoff und Luft bedeutet. Daher herrschen in der Brennkammer quasi "vorgemischte" Verbrennungsbedingungen vor und demzufolge werden die lokalen brennstoffreichen Zonen stark eingeschränkt. Gerade solche Bedingungen hemmen die übermäßige Bildung von Rußvorläufermolekülen, was unmittelbar zu einer Abnahme der Rußbildung führt. Die Ergebnisse haben auch kleinere Temperaturgradienten gezeigt bzw. eine weitere inhibierende Wirkung auf die Rußpartikelbildung. Die Vergrößerung der Zone hoher OH\*-Chemolumineszenz hat die Intensivierung der Rußoxidationsprozesse mittels OH-Radikalen zur Folge. Dazu beschleunigt die Vergrößerung der IRZ die sekundäre Oxidation der bereits entstandenen Rußpartikel, indem die Verweilzeit dieser Partikeln in der Region hoher OH- Konzentration zunimmt. Die frequenz- und amplitudenabhängige Antwort der Strömung auf akustische Oszillationen wirkt sich signifikant auf die Vermischungsbedingungen zwischen dem Brennstoff und der Oxidationsluft, sowie auf den Reaktionsfortschritt und das Temperaturfeld in der primären Brennkammer aus.

Zusammenfassend kann man sagen, dass der Einfluss der Anregung der Strömung auf die Rußbuldung und Oxidation neben der frequenzabhängigen Intensivierung der Oxidationsprozesse (Ausdehnung der Zone hoher OH-Konzentration) auch auf die ebenfalls frequenzabhängige Inhibierung der PAK–Bildung zurückzuführen ist.

## 5 Zusammenfassung

Die Hauptziele dieser Arbeit sind die experimentelle Untersuchung der Reaktion nicht vorgemischter turbulenten Drallflammen auf akustische Störungen bei einer Reihe von Anregungsfrequenzen (0-350 Hz) und des Einflusses von angeregten Geschwindigkeitsfluktuationen auf die Bildung und Oxidation von Ruß und Rußvorläufermolekülen. Dazu gehörte auch die Anpassung der Zwei-Farben-zeitaufgelösten-LII-Messtechnik an den RQL-Modellbrenner. Im Mittelpunkt der Zielsetzung liegt dabei die kaum untersuchte Interaktion zwischen der thermoakustischen Verbrennungsinstabilität und der Rußentstehung in der Flamme.

Die Ergebnisse wurden in drei Abschnitte eingeteilt. Im ersten Abschnitt wurden die ermittelten Rußeigenschaften, kombiniert mit Temperatur- und OH\* Chemolumineszenzmessungen in der untersuchten turbulenten nicht-vorgemischten Erdgas/Ethen Drallflamme vorgestellt. Der zweite Abschnitt befasste sich mit den Rußeigenschaften in der Flamme bei einer Variation des Luftverhältnisses bzw. der Drallzahl und den dabei beobachteten thermoakustischen Schwingungen (selbsterregte Verbrennungsinstabilität). Die Auswirkung dieser Instabilität auf die Temperaturverteilung und auf die Rußbildung und -oxidation wird diskutiert. Im dritten Abschnitt wurden die Verbrennungsinstabilität und der Einfluss akustischer Schwingungen auf die Strömung näher erforscht. Die Untersuchung der Temperatur- und Rußvorläuferverteilung (PAK's), sowie der OH\*- Chemolumineszenz (Flammenposition und Wärmefreisetzung) unter akustischer Anregung in der Flamme wurde in diesem Abschnitt dargestellt.

Die Anpassung der Zwei-Farben-zeitaufgelösten-LII-Messtechnik an den turbulenten, praxisrelevanten Bedingungen in dem RQL-Modellbrenner war erfolgreich. Die Anwendung dieser nonintrusiven Laseroptischen Methode hat das Erreichen der Hauptziele dieser Arbeit ermöglicht.

Aufgrund der akustischen Anregung der Luftzufuhr werden die Konzentrationsgradienten reduziert, was im Endeffekt eine verbesserte Vermischung von Brennstoff und Luft bedeutet. Daher herrschen in der Brennkammer quasi "vorgemischte" Verbrennungsbedingungen vor, und demzufolge werden die lokalen brennstoffreichen Zonen stark eingeschränkt. Gleichzeitig können im Fall der Anregung der Strömung (100 Hz) auch kleinere Temperaturgradienten beobachtet werden. Gerade solche Bedingungen hemmen die übermäßige Bildung von PAK's, was unmittelbar zu einer Inhibierung der Prozesse der Rußbildung und des Rußwachstums führt.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen eindeutig einen direkten Zusammenhang zwischen der PAK-Konzentration und den Rußeigenschaften in der Flamme. Im Fall der 100 Hz Anregung der Strömung wird eine Abnahme des Rußvolumenbruchs f<sub>V</sub> um ca. 50 % in allen Bereichen der Brennkammer, unter gleichzeitiger Reduktion des mittleren Rußpartikelradius, festgestellt. Diese Feststellung korreliert sehr gut mit der Veränderung der PAK´s-Konzentration in diesen Zonen. Eine Anregung mit 100 Hz verursacht eine Reduktion der Konzentration aller detektierten PAK´s (Naphthalin, Acenaphthalin, Indan, Inden, Pyren, Benzo[ghi]-fluoranthen, Cyclopenta[cd]pyren) in der Flamme. Unter Berücksichtigung der Rezirkulationszone bedeutet die dabei beobachtete räumliche Verschiebung der Maximalwerte auch eine zeitliche Verschiebung (späteres Auftreten der maximalen Spezies-Konzentration). Die akustische Anregung der Strömung und die dadurch verursachten Veränderungen in den Bedingungen der Brennkammer führen eindeutig zu einer Hemmung der Bildungsprozesse von PAK´s. Die Konzentration von Naphthalin wird um 40 %, von Acenaphthalin um 50 %, von Pyren um 60 % und von Cyclopenta[cd]pyren um ca.30 % reduziert.

Die Umverteilung der Konzentration von der PAK's und die Verschiebung der Maximalwerte in Richtung der Düse haben eine direkte Auswirkung auf die Prozesse der Rußpartikelgründung, sowie auf die anschließenden heterogenen Prozesse des Oberflächenwachstums. Die Rußbildungszone (Bildung von jungem Ruß) wird unter Anregung der Strömung kleiner und kann zu einem späteren Zeitpunkt beobachtet werden (Verzögerung der Rußpartkelgründung). Die Zone der Dominanz von den Koagulationsprozessen wird auch verschoben und tritt später auf.

Die Inhibierung der Bildung von Rußvorläufermolekülen und Rußwachstumsspezies, kombiniert mit der Vergrößerung der Dominanzzone von heterogenen Oxidationsprozessen an der Rußpartikeloberfläche, resultieren in einer Reduktion der Gesamtrußkonzentration, der Partikelgröße und der Anzahldichte in der Flamme. Die Vergrößerung der Zone hoher OH\*-Chemolumineszenz weist auf eine Intensivierung der Rußoxidationsprozesse mittels OH-Radikalen hin. Dazu beschleunigt die Vergrößerung der IRZ die sekundäre Oxidation der bereits entstandenen Rußpartikel, indem die Verweilzeit dieser Partikeln in der Region hoher OH-Konzentration erhöht wird.

**Zusammenfassend** wurde festgestellt, dass der Einfluss der Anregung der Strömung auf die Rußbildung und Oxidation auf zwei Hauptmechanismen beruht. Einerseits kann eine frequenzabhängige Intensivierung der Oxidationsprozesse (Ausdehnung der Zone hoher Konzentration von OH-Radikalen) festgestellt werden, andererseits ist eine ebenfalls frequenzabhängige Inhibierung der PAK's – Bildung zu beobachten. Die Berücksichtigung aller Ergebnisse dieser Arbeit erlaubt es, folgende Hypothese aufzustellen:

Der beobachtete frequenz- und amplitudenabhängige Einfluss der erzwungenen akustischen Anregung der Strömung auf die Prozesse der Rußbildung und -oxidation ist eine Folge der signifikanten Änderung des Geschwindigkeits- und Temperaturfeldes sowie der OH-Konzentration in der Flamme.

Aufgrund der akustischen Anregung der Luftzufuhr werden die Konzentrationsgradienten reduziert, was im Endeffekt eine verbesserte Vermischung von Brennstoff und Luft bedeutet. Somit herrschen in der Brennkammer quasi "vorgemischte" Verbrennungsbedingungen vor und demzufolge die lokalen brennstoffreichen Zonen stark eingeschränkt werden. Gerade solche Bedingungen hemmen die übermäßige Bildung von PAK's (Naphthalin, Acenaphthalin, Pyren etc.), was unmittelbar zu einer Abnahme der Rußpartikelgründung und des Rußwachstums führt. Die Vergrößerung der Zone hoher OH\*-Chemolumineszenz weist auf eine Intensivierung der Rußoxidationsprozesse mittels OH-Radikalen hin. Dabei wird die sekundäre Oxidation der bereits entstandenen Rußpartikel von der Vergrößerung der IRZ begünstigt. Das Auftretten von Verbrennungsinstabilitäten kann, je nach Frequenz, gravierende Folgen auf die Prozesse der Rußbildung und Oxidation und somit auf die Rußemission von technischen Verbrennungsanlagen haben. Der frequnz- und amplitudenabhängige Einfluß solcher Instabilitäten soll unbedingt bei der Rußmodellierung berücksichtigt werden, was zu einer Erhöhung der Genauigkeit von den Vorhersagemodellen führen wird.

Das Erreichen von einer verbesserten Homogenität und quasi "vorgemischten" Bedingungen in der Flamme mit einer gezielten Anregung der Luftströmung ist eine interessante Beobachtung und könnte als Ausgangspunkt einer neuartigen Strategie zur weiterführenden Optimierungen von Verbrennungsanlagen in Hinsicht auf Umweltverträglichkeit (Reduktion der Rußemission) angesehen werden. Dabei ist die zur Anregung der Strömung benötigte Energie um Größenordnungen kleiner als die Leistung der Flamme.

### 6 Summary

The main goals of this work are the experimental investigation of the reaction of non-premixed turbulent swirl flames to acoustic fluctuations at a range of excitation frequencies (0-350 Hz) and the influence on the formation and oxidation of soot and soot precursor molecules. This also included the adaptation of the two-color, **T**ime-**R**esolved **L**aser Induced Incandescence (TR-LII) measurement technology to the RQL model burner. The focus is on the hardly investigated interaction between the thermoacoustic combustion instability and the formation of soot in the flame.

The results were divided into three sections. In the first section the results from the determined soot properties, combined with temperature and OH\* chemiluminescence measurements in the turbulent, non-premixed natural gas / ethene swirl flame were presented. The second section dealt with the observed soot properties in the flame with a variation in the air ratio (swirl-number) and the thermoacoustic fluctuations (self-excited combustion instability). The impact of this instability on temperature distribution and on soot formation and oxidation is discussed. In the third section, combustion instability and the influence of acoustic fluctuations on the flow were investigated in more detail. The investigation of the temperature and soot precursor distribution (PAH's), as well as the OH\* chemiluminescence (flame position and heat release) under acoustic instabilities in the flame was presented in this section.

The adaptation of the two-color, time-resolved LII measurement technology to the turbulent, practice-relevant conditions in the RQL model burner was successful. The use of this non-intrusive laser optical method has made it possible to achieve the main goals of this work.

Due to the acoustic excitation of the air supply, the concentration gradients are reduced, which ultimately means an improved mixing of fuel and air. As a result, the combustion chamber has like "premixed" combustion conditions, which means that the local fuel-rich zones are severely restricted. At the same time, smaller temperature gradients can be observed in the case of flow excitation (100 Hz). Such conditions inhibit the excessive formation of PAHs, which leads directly to an inhibition of the processes of soot formation and soot growth.

The results of this work clearly show a direct connection between the PAH concentration and the soot properties in the flame. In the case of 100 Hz excitation of the flow, a decrease in the soot volume fraction  $f_V$  by approximately 50% is found in all areas of the combustion chamber, with a simultaneous reduction in the mean soot particle radius. These finding correlates very well with the change in the PAH concentration in these zones. An excitation with 100 Hz causes a reduction in the concentration of all detected PAHs (naphthalene, acenaphthalene, indane, indene, pyrene, benzo [ghi] -fluoranthene, cyclopenta [cd] pyrene) in the flame. Considering the recirculation zone, the observed spatial shift of the maximum values also means a time shift (later occurrence of the maximum species concentrati

on). The acoustic excitation of the flow and the resulting changes in the conditions of the combustion chamber clearly lead to an inhibition of the formation processes of PAHs. The concentration of naphthalene is reduced by 40%, of acenaphthalene by 50%, of pyrene by 60% and of cyclopenta [cd] pyrene by approximately 30%. The redistribution of the concentration from the PAHs and the shift of the maximum values in the direction of the nozzle have a direct effect on the processes of the soot particle formation as well as on the subsequent heterogeneous processes of surface growth. The soot formation zone (formation of young soot) becomes smaller when the flow is excited and can be observed later (delay in the formation of soot particles). The zone of dominance of the coagulation processes is also shifted and occurs later.

The inhibition of the formation of soot precursor molecules and soot growth species, combined with the increase in the dominance zone of heterogeneous oxidation processes on the soot particle surface, results in a reduction in the total soot concentration, the particle size and the number density in the flame. The enlargement of the zone of high OH\* chemoluminescence indicates an intensification of the soot oxidation processes by means of OH radicals. The enlargement of the IRZ accelerates the secondary oxidation of the already formed soot particles by increasing the residence time of these particles in the region of high OH concentration. It was found that the influence of flow excitation on soot formation and oxidation is based on two main mechanisms. On the one hand, a frequency-dependent intensification of the oxidation processes (expansion of the zone of high concentration of OH radicals) can be determined, on the other hand, a frequency-dependent inhibition of the PAHs formation can also be observed. Taking all the results of this work into account enables the following hypothesis to be established:

The observed frequency- and amplitude-dependent influence of the forced acoustic excitation of the flow on the processes of soot formation and oxidation is a consequence of the significant change in the speed and temperature field as well as the OH concentration in the flame. Due to the acoustic excitation of the air supply, the concentration gradients are reduced, which ultimately means an improved mixing of fuel and air. As a result, "premixed" combustion conditions prevail in the combustion chamber and consequently the local fuel-rich zones are severely restricted. Such conditions inhibit the excessive formation of PAHs (naphthalene, acenaphthalene, pyrene etc.), which leads directly to a decrease in the formation of soot particles and soot growth. The enlargement of the zone of high OH\* chemoluminescence indicates an intensification of the soot oxidation processes by means of OH radicals. The secondary oxidation of the already formed soot particles is favored by the enlargement of the IRZ.

Depending on the frequency, the occurrence of combustion instabilities can have serious consequences for the processes of soot formation and oxidation and thus for the soot emissions from technical combustion systems. The frequency and amplitude-dependent influence of such instabilities should be taken into account when modeling soot, which will lead to an increase in the accuracy of the prediction models.

The achievement of improved homogeneity and quasi "premixed" conditions in the flame with a targeted excitation of the air flow is an interesting observation and could serve as the starting

point for a novel strategy for further optimization of technical combustion regarding environmental compatibility (reduction of soot emission). The energy required to excite the flow is orders of magnitude smaller than the power of the flame.

#### Literaturverzeichnis

- [1] Bundesministerium für Wirtschaft und Energie, Energiedaten: Gesamtausgabe 2018.
- Bockhorn, H.; D'Anna, A.; Sarofim, A.F.; Wang, H. Combustion Generated Fine Carbonaceous, Proceedings of an International Workshop, Villa Orlandi, Anacapri (2007).
- [3] Bockhorn, H. Soot Formation in Combustion: Mechanism and Models (Springer, Berlin, 1994).
- [4] McEnally, C.S.; Pfefferle, L.D.; Atakan, B.; Kohse-Höinghaus, K. Studies of aromatic hydrocarbon formation mechanisms in flames: Progress towards closing the fuel gap. Prog. Energy Combust. Sci. 32(3), 247–294 (2006).
- [5] Balachandran, R.; Ayoola, B.O.; Kaminski, C.F.; Dowling, A.P.; Mastorakos, E. Combust. Flame 143, 37–55 (2005).
- [6] Ezekoye, O.A.; Martin, K.M.; Bisetti, F. Proc. Combust. Inst. 30, 1485–1492 (2005).
- [7] Idahosa, Uyi; Abhishek, Saha; Xu, Chengying; Basu, Saptarshi. Combust. Flame 157, 1800–1814
  (2010).
- [8] Lehre, T.; Suntz, R.; Bockhorn, H. Time-resolved two-color LII: size distributions of nanoparticles from gas-to-particle synthesis, in 30th Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, 2585 (2005).
- [9] Warnatz, J.; Maas, U.; Dibble, R.-W. Verbrennung (Physikalisch-Chemische Grundlagen, Modellbildung, Schadstoffentstehung) Springer-Lehrbuch, Heidelberg 1996.
- [10] Turns, S.R. An Introduction to Combustion: Concepts and Applications, McGraw-Hill, NY (1996).
- [11] Glassman, I. Combustion. Academic Press, New York (1977).
- [12] Williams, F.A. Combustion Theory. Benjamin/Cummings, Menlo Park (1984).
- [13] Lewis, B.; Elbe, G. von. Combustion, Flame, and Explosions of Gases. Academic Press, New York (1961).
- [14] Gaydon, A.; Wolfhard, H. Flames, Their Structure, Radiation, and Temperature. Chapman and Hall, London (1979).
- [15] Jost, W. Explosion and Combustion Processes in Gases. McGraw-Hill, New York (1946).

- [16] F. Joos, Technische Verbrennung (Verbrennungstechnik, Verbrennungsmodellierung, Emissionen), Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2006.
- [17] Günther, R. Verbrennung und Feuerungen, Springer-Verlag 1984.
- [18] Kasabov, P. Experimentelle Untersuchungen an abgehobenen Flammen unter Druck, Dissertation, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), 2014.
- [19] Fritz, J. Flammenrückschlag durch verbrennungsinduziertes Wirbelaufplatzen, Dissertation, Technische Universität München, 2003.
- [20] Wilcox, D.C. Turbulence modeling for CFD. Turbulence Modeling for CFD, DCW Industries, 2006.
- [21] Kuo, K.K. Principles of combustion. Hoboken: Wiley, 2005.
- [22] Reynolds, A.J. Turbulent flows in engineering. London, New York: John Wiley, 1974.
- [23] Poruba, C. Turbulente Flammenausbreitung in Wasserstoff-Luft-Gemischen, in Lehrstuhl für Thermodynamik. Dissertation, Technische Universität München, 2002.
- [24] Gerlinger, P. Numerische Verbrennungssimulation: Effiziente Numerische Simulation Turbulenter Verbrennung, Springer, 2005.
- [25] Pischinger, R. et al. Thermodynamik der Verbrennungskraftmaschine, Springer, 2009.
- [26] Turns, S.R. An introduction to combustion, McGraw-Hill series in mechanical engineering. Boston: McGraw-Hill, 2000.
- [27] Peters, N. Laminar flamelet concepts in turbulent combustion, Symposium (International) on Combustion, 21(1): 1231-1250, 1988.
- [28] Schmid, H.-P. Ein Verbrennungsmodell zur Beschreibung der Wärmefreisetzung von vorgemischten turbulenten Flammen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1995.
- [29] Schmittel, P. Untersuchungen zum Stabilisierungsmechanismus von eingeschlossenen turbulenten Flammen mit innerer Rückströmzone, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 2001.
- [30] Wetzel, F. Numerische Untersuchungen zur Stabilität nicht-vorgemischter, doppelt-verdrallter Flammen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 2007.

- [31] Merkle, K. Einfluss gleich- und gegensinniger Drehrichtung der Verbrennungsluftströme auf die Stabilisierung turbulenter Doppeldrall-Diffusionsflammen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 2006.
- [32] Holzäpfel, F. Zur Turbulenzstruktur freier und eingeschlossener Drehströmungen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1996.
- [33] Döbbeling, K. Experimentelle und theoretische Untersuchungen an stark verdrallten, turbulenten isothermen Strömungen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1990.
- [34] Schade, H.; Kunz, E. Strömungslehre, De-Gruyter-Lehrbuch. Berlin: de Gruyter, 2007.
- [35] Dinkov, I. Theoretische Erfassung des Strömungs- und Mischungsfeldes eines Movable-Block Drallerzeugers. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH), 2006.
- [36] Zierep, J.; Bühler, K. Grundzüge der Strömungslehre: Grundlagen, Statik und Dynamik der Fluide. Vieweg+Teubner Verlag, 2010.
- [37] Windmeier, C. Theoretische Erfassung des Einflusses gleich- und gegensinniger Verdrallung auf das Strömungs- und Mischungsfeld einer doppelflutigen Brennstoffdüse, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH), 2003.
- [38] Jung, R. Beiträge angewandter Strömungsforschung zur Entwicklung der Kohlenstaubfeuerung. VDI-Forschungsheft. Bd. 532, Düsseldorf, 1969.
- [39] Chigier, N.A.; Beér, J.M. Velocity and static pressure distributions in swirling air jets issuing from annular and divergent nozzles, J Basic Eng, 86(4): 778–796, 1964.
- [40] Hoffmann, S. Untersuchungen des Stabilisierungsverhaltens und der Stabilitätsgrenzen von Drallflammen mit innerer Rückströmzone, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1994.
- [41] Kerr, N.M.; Fraser, D. Swirl, part I: Effect on axisymmetric turbulent jets, Journal of the Institute of Fuel, 38: 519-526, 1965.
- [42] Zhang, F. Numerical Modeling of Noise Emissions caused by Turbulent Combustion, Dissertation 2014.
- [43] Bender, C.; Zhang, F.; Habisreuther, P.; Bockhorn, H. Measurement and Simulation of Combustion Noise emitted from Swirl Burners, in: Schwarz, A.; Janicka, J. (Eds.), Combustion

Noise (DFG Research Unit 486), Fluid Mechanics and Its Applications, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2009: pp. 33–62. doi:10.1007/978-3-642-02038-4.

- [44] Zhang, F.; Habisreuther, P.; Hettel, M.; Bockhorn, H. Numerical computation of combustion induced noise using compressible LES and hybrid CFD/CAA methods, Acta Acustica United with Acustica. 98 (2012) 120–134, doi:10.3813/AAA.918498.
- [45] Zhang, F.; Habisreuther, P.; Bockhorn, H.; Nawroth, H.; Paschereit, C.O. On Prediction of Combustion Generated Noise with the Turbulent Heat Release Rate, Acta Acustica United with Acustica. 99 (2013) 940–951, doi:10.3813/AAA.918673.
- [46] Bui, T.P.; Schröder, W.; Meinke, M. Numerical analysis of the acoustic field of reacting flows via acoustic perturbation equations, Computers & Fluids. 37 (2008) 1157–1169, doi:10.1016/j.compfluid.2007.10.014.
- [47] Silva, C.F.; Leyko, M.; Nicoud, F.; Moreau, S. Assessment of combustion noise in a premixed swirled combustor via Large-Eddy Simulation, Computers & Fluids. 78 (2013) 1–9, doi:10.1016/j.compfluid.2010.09.034.
- [48] Flemming, F.; Sadiki, A.; Janicka, J. Investigation of combustion noise using a LES/CAA hybrid approach, Proceedings of the Combustion Institute, 31 (2007) 3189–3196, doi:10.1016/j.proci.2006.07.060.
- [49] Hirsch, C.; Wäsle, J.; Winkler, A.; Sattelmayer, T. A spectral model for the sound pressure from turbulent premixed combustion, in: Proceedings of the Combustion Institute, 2007: pp. 1435– 1441. doi:10.1016/j.proci.2006.07.154.
- [50] Smith, K.; Blust, J. Combustion instabilities in industrial gas turbines: Solar turbines' experience, Progress in Astronautics and Aeronautics. (2005) 29–41.
- [51] Sewell, J.; Sobieski, P.; Beers, C. Application of continuous Combustion Dynamics Monitoring on large industrial gas turbines, Proceedings of ASME Turbo Expo 2004, Power for Land, Sea and Air. (2004) 1–9.
- [52] Rayleigh, J.W.S. The Explanation of Certain Acoustical Phenomena, Nature. 18 (1878) 319–321.
- [53] Rayleigh, J.W.S. The Theory of Sound, 2 (1945).
- [54] Putnam, A.A. Combustion-driven oscillations in industry, American Elsevier Publishing Company. (1971).

- [55] Nicoud, F.; Poinsot, T. Thermoacoustic Instabilities: Should the Rayleigh Criterion be Extended to Include Entropy Changes?, Combustion and Flame. 142 (2005) 153–159, doi:10.1016/j.combustflame.2005.02.013.
- [56] Crocco, L.; Cheng, S.-I. High frequency combustion instability in rockets with distributed combustion, Symposium (International) on Combustion, 4 (1953) 865–880.
- [57] Zinn, B.T.; Powell, E.A. Nonlinear combustion instability in liquid-propellant rocket engines, Symposium (International) on Combustion, 13 (1971) 491–503. doi:10.1016/S0082-0784(71)80051-6.
- [58] Cohen, J.; Proscia, W.;. DeLaat, J. Characterization and control of aeroengine combustion instability: Pratt & Whitney and NASA experience, Progress in Astronautics and Aeronautics, (2005).
- [59] Scarinci, T. Combustion instability and its passive control: Rolls-Royce aeroderivative engine experience, in: Progress in Astronautics and Aeronautics, 2005.
- [60] J. Hermann, J.; Hoffmann, S. Implementation of active control in a full-scale gas-turbine combustor, Progress in Astronautics and Aeronautics, (2005).
- [61] Keller, J. Thermoacoustic oscillations in combustion chambers of gas turbines, AIAA Journal, 33 (1995).
- [62] Ducruix, S.; Schuller, T.; Durox, D.; Candel, S. Combustion instability mechanisms in premixed combustors, Progress in Astronautics and Aeronautics. (2005).
- [63] Lieuwen, T.C.; Zinn, B.T. Combustion Instabilities: Basic Concepts, in: T.C. Lieuwen, V. Yang (Eds.), Combustion Instabilities in Gas Turbine Engines : Operational Experience, Fundamental Mechanisms and Modeling, 2005: pp. 3–24.
- [64] Kendrick, D.W.; Anderson, T.J.; Sowa, W.A.; Snyder, T.S. Acoustic sensitivities of leanpremixed fuel injectors in a single nozzle rig, Journal of Engineering for Gas Turbines and Power. 121 (1999) 429–436.
- [65] Meier, W.; Weigand, P.; Duan, X.; Giezendanner-Thoben, R. Detailed characterization of the dynamics of thermoacoustic pulsations in a lean premixed swirl flame, Combustion and Flame, 150 (2007) 2–26. doi:10.1016/j.combustflame.2007.04.002.

- [66] Hermeth, S.; Staffelbach, G.; Gicquel, L.Y.M.; Poinsot, T. LES evaluation of the effects of equivalence ratio fluctuations on the dynamic flame response in a real gas turbine combustion chamber, Proceedings of the Combustion Institute, 34 (2013) 3165–3173, doi:10.1016/j.proci.2012.07.013.
- [67] Lieuwen, T.; Zinn, B.T. The role of equivalence ratio oscillations in driving combustion instabilities in low NOx gas turbines, Symposium (International) on Combustion, 27 (1998) 1809–1816. doi:10.1016/S0082-0784(98)80022-2.
- [68] Delacruzgarcia, M.; Mastorakos, E.; Dowling, A. Investigations on the self-excited oscillations in a kerosene spray flame, Combustion and Flame, 156 (2009) 374–384, doi:10.1016/j.combustflame.2008.11.018.
- [69] Candel, S. Combustion dynamics and control: Progress and challenges, Proceedings of the Combustion Institute, 29 (2002) 1–28. doi:10.1016/S1540-7489(02)80007-4.
- [70] Külsheimer, C.; Büchner, H. Combustion Dynamics of Turbulent Swirling Flames, Combustion and Flame, 84 (2002) 70–84.
- [71] Lohrmann, M.; Büchner, H.; Zarzalis, N.; Krebs, W. Flame Transfer Function Characteristics of Swirl Flames for Gas Turbine Applications, in: ASME Turbo Expo 2003, Collocated with the 2003 International Joint Power Generation Conference, ASME, Atlanta, Georgia, USA, 2003: pp. 109– 118.
- [72] Büchner, H. Strömungs-und Verbrennungsinstabilitäten in technischen Verbrennungssystemen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 2001.
- [73] Syred, N.; Beer, J. Combustion in swirling flows: a review, Combustion and Flame, (1974).
- [74] Syred, N.; Gupta, A.; Beer, J. Temperature and density gradient changes arising with the precessing vortex core and vortex breakdown in swirl burners, Symposium (International) on Combustion, (1975).
- [75] Syred, N.; Fick, W.; O'Doherty, T.; Griffiths, A.-J. The Effect of the Precessing Vortex Core on Combustion in a Swirl Burner, Combustion Science and Technology, 125 (1997) 139–157, doi:10.1080/00102209708935657.

- [76] Syred, N. A Review of Oscillation Mechanisms and the Role of the Precessing Vortex Core (PVC) in Swirl Combustion Systems, Progress in Energy and Combustion Science, 32 (2006) 93–161. doi:10.1016/j.pecs.2005.10.002.
- [77] Kraus, C. Experimental and Numerical Investigation of the Influence of Multiple-Burner Arrangements on Combustion Instabilities in Turbulent Swirl-Stabilized Flames, Dissertation, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), 2014.
- [78] Hansen J, Nazarenko L., Soot climate forcing via snow and ice albedos, Proc Natl Acad Sci USA 2004;101:423–8.
- [79] Andreae, M.O., The dark side of aerosols. Nature 2001;409: 671–2.
- [80] Jacobson, M.Z. Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming. J Geophys Res 2002;107(D19),[Article Number 4410].
- [81] McEnally, C.S.; Pfefferle, L.D.; Atakan, B.; Kohse-Höinghaus, K. Studies of aromatic hydrocarbon formation mechanisms in flames: Progress towards closing the fuel gap, Progress in Energy and Combustion Science 32 (2006) 247–294.
- [82] Bartenbach, B. Untersuchungen zur Rußoxidation unter den Bedingungen turbulenter Diffusionsflammen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1998.
- [83] Lehre, T. Entwicklung einer berührungslosen in-situ Messmethode zur Bestimmung von Größenverteilungen nanoskaliger Teilchen, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 2004.
- [84] Warnatz, J.; Maas, U.; Dibble, R.W. Verbrennung, 2. Auflage, Springer Verlag, Berlin (1997).
- [85] Glassman, I. Combustion, Academic press, New York/London (1996).
- [86] Frenklach, M.; Wang, H. in: Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models,. Bockhorn, H. Ed., Springer Verlag, Berlin, pp. 165 (1994).
- [87] Lindstedt, R.P.; Skevis, T. Combust. Sci. Tech. 125:73 (1997).
- [88] Henry, T.J.; Bergman, R.G. Independent Mechanisms in the Thermal Rearrangement of Monoand Bicyclic 3,4-Bismethylenecyclobutene Derivatives, Journal of the American Chemical Society, 94(14), 5103-5105, (1972).

- [89] Frenklach, M.; Wang, H. Detailed mechanism and modeling of soot particle formation, Springer Series in Chemical Physics, 59, 165-192, (1994).
- [90] Keller, H. Bildung und Wachstum von Rußpartikeln bei hohen Drücken: Untersuchungen am Stoßwellenrohr, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), (1999).
- [91] Merker, G.P.; Schwarz, C. (Hrsg.), Grundlagen Verbrennungsmotoren Simulation der Gemischbildung, Verbrennung, Schadstoffbildung und Aufladung, 4. Auflage, Vieweg + Teubner Verlag, (2010).
- [92] Frenklach, M.; Wang, H. Proc. Combust. Inst. 18:1559 (1990).
- [93] Mauß, F.; Schäfer, Th.; Bockhorn, H. Comb. Flame 99, S. 697–705, 1994.
- [94] Lehre, T.; Suntz, R.; Bockhorn, H. Time-resolved two-color LII: size distributions of nanoparticles from gas-to-particle synthesis, in 30th Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, 2585 (2005).
- [95] Hamamatsu Instruction manual for streak camera C7770.
- [96] Lehre, T.; Jungfleisch, B.; Suntz, R.; Bockhorn, H. Appl. Opt. 42, 2021 (2003).
- [97] Lehre, T.; Bockhorn, H.; Jungfleisch, B.; Suntz, R. Chemosphere 51, 1055 (2003).
- [98] Charwath, M. Experimentelle Untersuchung und numerische Simulation der Rußbildung in laminaren Methan/Luft Diffusionsflammen, Dissertation, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), 2011.
- [99] Therssen, E.; Bouvier, Y.; Schoemaecker-Moreau, C.; Mercier, X.; Desgroux, P.; Ziskind, M.; Focsa, C. Determination of the ratio of soot refractive index function E(m) at the two wavelengths 532 and 1064 nm by laser induced incandescense. Appl. Phys. B 89, 417–427 (2007).
- [100] de Andrade Oliveira, M.H.; Olofsson, N.-E.; Johnsson, J.; Bladh, H.; Lantz, A.; Li, B.; Li, Z.S.; Alden,
  M.; Bengtsson, P.-E.; Luijten, C.C.M.; de Goey, L.P.H. Soot, PAH and OH measurements in vaporized liquid fuel flames. Fuel 112, 145–152 (2013).
- [101] Schulz, C.; Kock, B.F.; Hofmann, M.; Michelsen, H.; Will, S.; Bougie, B.; Suntz, R.; Smallwood, G. Appl. Phys. B 83, 333–354 (2006).

- [102] Snelling, D.R.; Smallwood, G.J.; Liu, F.; Gülder, Ö.L.; Bachalo, W.D. A calibration-independent laser-induced incandescence technique for soot measurement by detecting absolute light intensity. Appl. Opt. 44, 6773–6785 (2005).
- [103] Jenkins, T.P.; Hanson, R.K. Combust. Flame 126, 1669 1679 (2001).
- [104] Jenkins, T.P.; Hanson, R.K. Combust. Flame 126, 1669 (2001).
- [105] Kerker, M. The Scattering of Light and other Electromagnetic Radiation (Academic Press, New York, 1969).
- [106] Dalzell, W.H.; Sarofim, A.F. J. Heat Transf. 91, 161 (1969).
- [107] Lee, S.C.; Tien, C.L. in 18th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Inst., Pittsburgh (1981), pp. 1159–1166.
- [108] Stagg, B.J.; Charalampopoulos, T.T. Combust. Flame 94, 381 (1993).
- [109] Simonsson, J.; Olofsson, N.-E.; Török, S.; Bengtsson, P.-E.; Bladh, H. Wavelength dependence of extinction in sooting flat premixed flames in the visible and near-infrared regimes. Appl. Phys. B (2015). doi:10.1007/s00340-015-6079-z.
- [110] Olofsson, N.-E.; Simonsson, J.; Török, S.; Bladh, H.; Bengtsson, P.-E. Evolution of properties for aging soot in premixed flat flames studied by laser-induced incandescence and elastic light scattering. Appl. Phys. B (2015). doi:10.1007/ s00340-015-6067-3.
- [111] Arndt, C.M.; Severin, M.; Dem, C.; Stöhr, M.; Steinberg, A.M.; Meier, W. Experimental analysis of thermo-acoustic instabilities in a generic gas turbine combustor by phase-correlated PIV, chemiluminescence and laser Raman scattering measurements, in Experiments in Fluids, Experimental Methods and their Applications to Fluid Flow (Springer, Berlin, 2015). doi:10.1007/ s00348-015-1929-3
- [112] Raffael, M.; Willert, C.E.; Wereley, S.T.; Kompenhans, J. Particle Image Velocimetry: A Practical Guide (Springer, Berlin, 1998 /2007 2nd ed.).
- [113] Merzkirch, W. Flow Visualization (Academic Press, Orlando, 1987).
- [114] Westerweel, J. Digital particle image velocimetry—theory and application, PhD Dissertation, Delft University Press, Delft (1993).

- [115] Giezendanner-Thoben, R. Untersuchung von Verbrennungsinstabilitäten mit phasenkorrelierten Lasermesstechniken, Dissertation, Universität Stuttgart, 2006.
- [116] Kathrotia, T.; Riedel, U.; Seipel, A.; Moshammer, K.; Brockhinke, A. Experimental and numerical study of chemiluminescent species in low-pressure flames, Appl Phys B. 107 (2012) 571–584.
- [117] Schuermans, B.; Guethe, F.; Mohr, W. Optical Transfer Function Measurements for Technically Premixed Flames, Journal of Engineering for Gas Turbines and Power. 132 (2010) 081501. doi:10.1115/1.3124663.
- [118] Lauer, M.; Sattelmayer, T. On the adequacy of chemiluminescence as a measure for heat release in turbulent flames with mixture gradients, Journal of Engineering for Gas Turbines and Power. 132 (2010).
- [119] Steinberg, A.M.; Arndt, C.M.; Meier, W. Parametric Study of Vortex Structures and their Dynamics in Swirl-Stabilized Combustion, Proceedings of the Combustion Institute. 34 (2013) 3117–3125. doi:10.1016 /j.proci.2012.05.015.
- [120] Stöhr, M.; Sadanandan, R.; Meier, W. Experimental study of unsteady flame structures of an oscillating swirl flame in a gas turbine model combustor, in: Proceedings of the Combustion Institute, 2009: pp. 2925–2932. doi:10.1016/j.proci.2008.05.086.
- [121] Suntz, R. Laserspektroskopische Untersuchung laminarer und turbulenter Flammen, Habilitationsschrift, Universität Karlsruhe (TH), 1999.
- [122] Zinn, B.; Lieuwen, T. Combustion instabilities: Basic concepts, Progress in Astronautics and Aeronautics. (2005).
- [123] Benish, T.G.; Lafeur, A.L.; Taghizadeh, K.; Howard, J.B. C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> and PAH as soot growth reactants in premixed C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> air Flames, Twenty-Sixth International Symposium on Combustion/The Combustion Institute, 1996/pp. 2319-2326
- [124] Brocklehurst, H.; Challenges of the soot modelling in gas turbine combustors, Proceedings of an International Workshop, Villa Orlandi, Anacapri (2007)
- [125] Freimann, R. Hydraulik für Bauingenieure: Grundlagen und Anwendungen, Hanser Fachbuchverlag, 2008.
- [126] eskp.de | Earth System Knowledge Platform die Wissensplattform des Forschungsbereichs Erde und Umwelt der Helmholtz-Gemeinschaft

[127] LaVision GmbH, Anna-Vandenhoeck-Ring 19, D-37081 Göttingen | Product-Manual for DaVis
 8.0, Document name: 1004730\_HighSpeedStar\_D80.pdf and 1004058\_HSS5\_D80.pdf