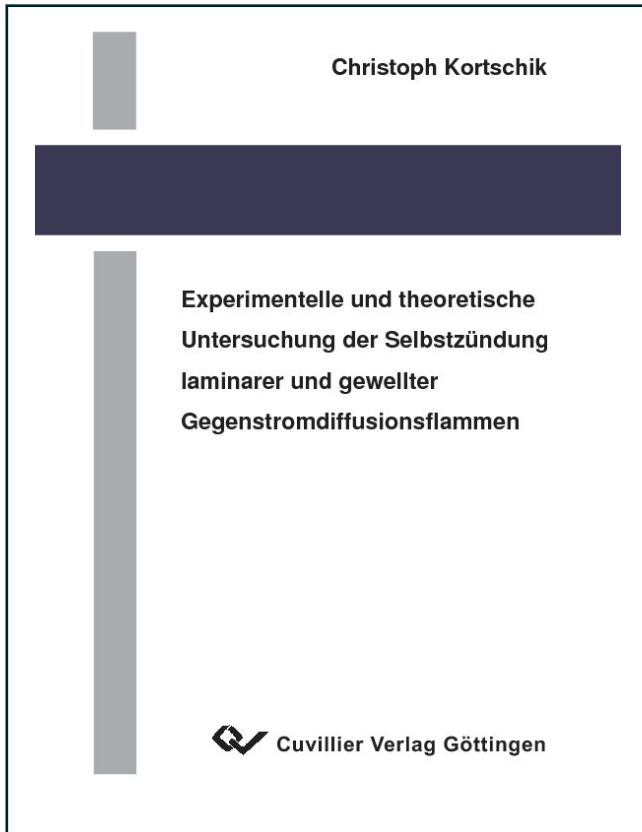




Christoph Kortschik (Autor)

**Experimentelle und theoretische Untersuchung der  
Selbstzündung laminarer und gewellter  
Gegenstromdiffusionsflammen**



<https://cuvillier.de/de/shop/publications/2410>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,  
Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: [info@cuvillier.de](mailto:info@cuvillier.de), Website: <https://cuvillier.de>

# 1 Einleitung

Etwa 85 % des gesamten weltweiten Energieverbrauchs basiert auf der Verbrennung fossiler Energieträger. Vor diesem Hintergrund und in Anbetracht der begrenzten Ressourcen sowie der Anforderungen hinsichtlich der Umweltverträglichkeit sind die Steigerung der Effizienz und die Optimierung des Emissionsverhaltens zentrale Ziele bei der Entwicklung moderner Verbrennungstechnologien.

Ausgangspunkt aller schnellen Verbrennungsprozesse ist die Zündung. Dabei bezeichnet der Begriff Zündung allgemein Vorgänge, bei denen ein exotherm reagierender Stoff in einen Zustand sehr schneller Oxidation gebracht wird. Wird die Zündung eines Brennstoff/Oxidator-Gemisches lokal von außen, zum Beispiel durch heiße Oberflächen beziehungsweise Gase, Zündfunken oder eine Pilotflamme, hervorgerufen, so wird dieser Vorgang als erzwungene Zündung bezeichnet. Erfolgt die Zündung hingegen spontan ohne den Einfluss einer externen Zündquelle, so wird dieser Vorgang mit dem Begriff Selbstzündung beschrieben.

Im Unterschied zur erzwungenen Zündung ist die Selbstzündung in praktischen Verbrennungssystemen nicht grundsätzlich erwünscht. So können Selbstzündvorgänge beim Ottomotor so genanntes Klopfen hervorrufen, das zur Beschädigung des Motors führen kann. Auch bei Feuerungen und Brennkammern ist die unkontrollierte Selbstzündung einer unbeabsichtigt verloschenen Flamme ein unerwünschter Vorgang, der die Betriebssicherheit der Anlagen gefährden kann. Ebenso verhält es sich mit Brennstoffströmen, die sich infolge einer Leckage unbeabsichtigt mit Luft vermischen und auf diese Weise ein Sicherheitsrisiko darstellen. Auf der anderen Seite spielt die Selbstzündung bei zahlreichen technischen Verbrennungsprozessen eine entscheidende Rolle. In diesem Zusammenhang ist eine der bedeutendsten technischen Anwendungen der Dieselmotor, der vielfach auch als Selbstzünder bezeichnet wird. Darüber hinaus werden seit einiger Zeit neuartige Motorenkonzepte, wie zum Beispiel das HCCI-Verfahren (*Homogeneous Charge Compression Ignition*), vielfach auch als CAI-Verfahren (*Controlled Auto Ignition*) bezeichnet, erprobt, bei denen die Verbrennung ebenfalls durch eine Selbstzündung eingeleitet wird [49, 87, 114]. Bei diesen technischen Anwendungen ist insbesondere die gezielte Einflussnahme auf den Zeitpunkt und den Ort der Selbstzündung von Interesse.

Im Hinblick auf die praktische Anwendung im Verbrennungsmotor wurden zwei Größen, die Cetan-Zahl und die Oktan-Zahl, definiert, welche die Klassifizierung des Selbstzündverhaltens von Kraftstoffen unter motorischen Randbedingungen ermöglichen. Die Cetan-Zahl gibt an, wie viel Volumenprozent Cetan eine Mischung aus Cetan und  $\alpha$ -Methylnaphthalin enthält, die in einem Prüfmotor dieselbe Zündverzugszeit wie der zu prüfende Kraftstoff aufweist [88]. Die Oktan-Zahl beschreibt die Sicherheit gegen das Auftreten von Selbstzündungen und ist somit ein Maß für die Klopfestigkeit eines Kraftstoffs. Die Oktan-Zahl gibt an, wie viel Volumenprozent iso-Oktan eine Mischung aus iso-Oktan und  $n$ -Heptan enthält, die in einem Prüfmotor dieselbe Klopfestigkeit aufweist, wie der zu prüfende Kraftstoff [88]. Beide Größen basieren also auf einem Vergleich mit einem Referenzkraftstoff unter motorischen Randbedingungen und haben darüber hinaus keine unmittelbare physikalische Bedeutung.

Erste systematische Untersuchungen zur Selbstzündung wurden bereits zu Beginn des letzten Jahrhunderts in vorgemischten homogenen Brennstoff/Oxidator-Gemischen durchgeführt [34, 35]. Dabei stand zunächst die Frage im Vordergrund, bei welcher Wahl von Druck, Temperatur und Zusammensetzung ein vorgegebenes Brennstoff/Oxidator-Gemisch in einem geschlossenen Druckbehälter spontan beziehungsweise nach einer bestimmten Induktionszeit zünden kann. Im  $p$ - $T$ -Diagramm ergeben sich auf diese Weise die Explosions- oder Zündgrenzen, welche Gebiete langsamer Oxidation von Selbstzündgebieten trennen. Als klassisches Beispiel sind in diesem Zusammenhang die Zündgrenzen des Wasserstoff/Sauerstoff-Systems zu nennen, die im  $p$ - $T$ -Diagramm die Form einer Z-Kurve beschreiben [64].

Zur Erklärung der Zündgrenzen in vorgemischten Systemen wurden schon früh einfache Modelle entwickelt, von denen die vereinfachte thermische Theorie der Explosion von Semenov [107] und die thermische Theorie der Explosion von Frank-Kamenetskii [43] zu den bekanntesten zählen. Beide Theorien beschreiben die Selbstzündung als Konkurrenzprozess zwischen der Wärmeproduktion einer exothermen Ein-Schritt-Reaktion und dem Wärmeverlust über die Systemgrenzen. Neben der thermischen Explosion kann es jedoch auch infolge einer Kettenexplosion zu einer Selbstzündung kommen. Solche Kettenexplosionen sind auf die Konkurrenz zwischen kettenverzweigenden Reaktionen und Kettenabbruchreaktionen zurückzuführen. Im allgemeinen Fall treten thermische und kettenverzweigende Effekte gleichzeitig auf und können nicht voneinander getrennt betrachtet werden. Die Selbstzündung kann dann nur noch mit umfangreichen chemischen Reaktionsmechanismen beschrieben werden, welche eine detaillierte Kenntnis der Reaktionskinetik der bestimmenden Elementarreaktionen voraussetzen.

Zur Bestimmung reaktionskinetischer Daten sowie zur Validierung von chemischen Reaktionsmechanismen eignen sich besonders vorgemischte homogene Systeme, da

die chemischen Prozesse hier unbeeinflusst von physikalischen Transportprozessen ablaufen. Für Selbstzünduntersuchungen in homogenen vorgemischten Systemen wurden in der Vergangenheit eine Reihe unterschiedlicher Versuchsträger, wie zum Beispiel geschlossene Druckbehälter [98, 109], schnelle Verdichtungsmaschinen [24, 35, 46, 74], Strömungsreaktoren [17, 27] und Stoßwellenrohre [21, 23, 126], eingesetzt. Die typische Messgröße dieser Versuchsanordnungen ist die Zündverzugszeit, wobei für jede Versuchsanordnung eine geeignete Definition dieser Größe bestimmt werden muss.

Für die Selbstzündung in geschlossenen Druckbehältern wird ein Behälter bis zu einem bestimmten Druck mit einem Oxidator/Inertgas-Gemisch befüllt und bis auf eine bestimmte Temperatur erwärmt. Der Brennstoff wird anschließend mit hoher Geschwindigkeit in die Druckkammer eingedüst. Die Zündverzugszeit ergibt sich zum Beispiel aus der Zeitdifferenz zwischen der Eindüsung und dem Druckanstieg im Druckbehälter infolge der Selbstzündung. Da sich Brennstoff und Oxidator nach erfolgter Eindüsung zunächst mischen müssen, wird die Homogenität dieses Systems in der Regel nur näherungsweise erreicht.

Bei der schnellen Verdichtungsmaschine wird, ähnlich wie beim Verbrennungsmotor, ein vorgegebenes homogenes Brennstoff/Luft-Gemisch durch Kompression mittels eines Kolbens zur Selbstzündung gebracht. Wird die Kompression sehr schnell durchgeführt, so kann dieser Vorgang im Idealfall als adiabat betrachtet werden. Allerdings ist, bedingt durch die endliche Kolbengeschwindigkeit, keine beliebig kurze Zündverzugszeit messbar, so dass dieses Messverfahren nur den unteren Temperaturbereich abdeckt [46].

Für Untersuchungen im Hochtemperaturbereich eignen sich Stoßwellenrohre, in denen ein homogenes Gemisch hinter einer reflektierten Welle zur Selbstzündung gebracht wird. Die mit dieser Versuchsanordnung bestimmbaren Zündverzugszeiten liegen typischerweise unterhalb von 10 ms [21].

Bei Strömungsreaktoren wird zwischen dem Jet-Stirred-Reactor [27, 28] und dem Continuous-Flow-Reactor [17, 44] unterschieden. Der Jet-Stirred-Reactor besteht in der Regel aus einem keramischen Gefäß, in das ein vorgemischtes Brennstoff/Oxidator-Gemisch kontinuierlich mit hoher Geschwindigkeit eingedüst wird. Im Unterschied dazu wird der Brennstoff beim Continuous-Flow-Reactor separat in einen kontinuierlich strömenden heißen Oxidatorstrom eingedüst. Auch bei dieser Versuchsanordnung kann, ähnlich wie bei der Selbstzündung im Druckbehälter, nur näherungsweise von einer homogenen Mischung ausgegangen werden.

Bei vielen technisch relevanten Anwendungen, wie zum Beispiel beim Dieselmotor, handelt es sich um nicht vorgemischte Verbrennungssysteme, bei denen der Selbstzündprozess in einem heterogenen Gemisch mit ausgeprägten Temperatur- und Kon-

zentrationsgradienten abläuft. Die Beschreibung der Selbstzündung in solchen nicht vorgemischten Verbrennungssystemen ist gegenüber den homogenen Systemen deutlich komplizierter, da der Prozess nicht nur von den reaktionskinetischen Vorgängen, sondern zudem durch molekulare, konvektive und turbulente Transportprozesse bestimmt wird.

Grundlagenuntersuchungen zur Selbstzündung in nicht vorgemischten Verbrennungssystemen werden vielfach an Gegenstromdiffusionsflammen durchgeführt. Diese Versuchsanordnung besteht im Wesentlichen aus zwei gegenüberliegend angeordneten Düsen, zwischen denen sich eine ebene Staupunktströmung ausbildet. Die Gegenstromanordnung kann, wie in Kapitel 3 gezeigt wird, näherungsweise mit eindimensionalen Erhaltungsgleichungen mit genau definierten Randbedingungen beschrieben werden und eignet sich damit besonders gut zur Validierung chemischer Reaktionsmechanismen. Darüber hinaus hat diese Versuchsanordnung den Vorteil, dass die Selbstzündung, abhängig von der Streckungsrate, über einen weiten Temperaturbereich untersucht werden kann.

In der laminaren Gegenstromkonfiguration wurde die Selbstzündung zunächst numerisch von Kreutz et al. [59] und theoretisch von Lee et al. [63] an Wasserstoff/Luft-Systemen untersucht. Dabei stellte sich die Streckungsrate als eine wichtige Einflussgröße für die Selbstzündung heraus. Die Streckungsrate bestimmt die für die chemischen Prozesse zur Verfügung stehende Verweilzeit. Mit zunehmender Streckungsrate sinkt die Verweilzeit, so dass für die Selbstzündung eine höhere Oxidatortemperatur erforderlich ist. Die theoretischen Ergebnisse wurden von Fotache et al. [40] anhand von experimentellen Untersuchungen an laminaren Wasserstoff/Luft-Systemen über einen weiten Streckungsraten- und Druckbereich bestätigt. Als Grundlage für die Validierung reduzierter Mechanismen wurden die experimentellen Untersuchungen später auch für Methan [39], Ethan, Propan und Butan [42] sowie für die höheren Kohlenwasserstoffe *n*-Heptan [9, 106] und iso-Oktan [9] durchgeführt. Die Untersuchung der Oxidation von Alkanen mit mehr als zwei C-Atomen ist insbesondere deshalb von Interesse, weil diese bereits das für viele höhere Kohlenwasserstoffe charakteristische NTC-Verhalten (*negative temperature coefficient*) aufweisen [42]. Dieser Begriff beschreibt die Zunahme der Zündverzugszeit mit der Temperatur in einem bestimmten Temperaturbereich.

Bei der Selbstzündung von nicht laminaren Diffusionsflammen wird heute vielfach davon ausgegangen, dass sich zunächst lokal so genannte Zündkerne ausbilden, von denen aus sich die Flamme in Form einer Tripel-Flamme in die unverbrannten Mischungszonen ausbreitet [31]. Lokal begrenzte Zündgebiete wurden in experimentellen Arbeiten bei der Selbstzündung in Diesel-Sprays beobachtet [3, 101]. Sato et al. [101] wiesen mit Hilfe von Hochgeschwindigkeitsphotographie Selbstzündgebiete in der Nähe der Spray-Spitze nach, während Baritaud et al. [3] mit Hilfe Laser-induzierter

Exciplex-Fluoreszenz zeigten, dass die Selbstzündung in der Nähe der Einspritzdüse einsetzt. Eine detaillierte Studie zum Einfluss der wichtigsten motorischen Parameter auf die Position der Zündorte bei der Diesel-Direkteinspritzung findet sich in [86]. Demnach ist die Position erster detektierbarer Zündereignisse im Wesentlichen von der durch das Einspritzsystem bestimmten Gemischaufbereitung während der Zündverzugszeit abhängig.

In der experimentellen Arbeit von Blouch et al. [10] wurde demonstriert, dass die Zündtemperatur turbulenter Wasserstoff/Luft-Gegenstromdiffusionsflammen bei hohen Brennstoffkonzentrationen nahezu unabhängig von der Turbulenzintensität ist. Bei geringer Brennstoffkonzentration treten erste Zündereignisse in turbulenten Strömungen jedoch bereits bei niedrigeren Temperaturen auf als in laminaren Strömungen.

Mit Hilfe direkter numerischer Simulation (DNS) wurde in zahlreichen Arbeiten gezeigt, dass die Entstehung früher Zündkerne vor allem von zwei skalaren Größen, dem Mischungsbruch und der lokalen skalaren Dissipationsrate, bestimmt wird [50, 51, 54, 68, 112]. Beim Mischungsbruch handelt es sich um eine dimensionslose Größe, die den Mischungszustand eines Brennstoff/Oxidator-Gemisches beschreibt. Die skalare Dissipationsrate ist ein Maß für die Diffusionsgeschwindigkeit der skalaren Größen im Mischungsfeld. Sowohl der Mischungsbruch als auch die skalare Dissipationsrate werden in Kapitel 2 detailliert beschrieben.

Mastorakos et al. [68] untersuchten als Erste mit Hilfe direkter numerischer Simulation in zweidimensionalen turbulenten Mischungszonen Orte, an denen sich Zündkerne ausbilden. Diese auf einer irreversiblen 1-Schritt-Kinetik basierenden Simulationen zeigten, dass frühe Zündkerne stets auf der Isokontur eines bestimmten Mischungsbruchwertes liegen. Entlang dieser Kontur liegen die Zündkerne stets dort, wo die skalare Dissipationsrate ein lokales Minimum aufweist. Diese Ergebnisse wurden von Im et al. [54] und von Hilbert et al. [50, 51] durch zweidimensionale DNS-Untersuchungen mit detaillierten chemischen Mechanismen für turbulente Wasserstoff/Luft-Mischungszonen bestätigt. In [51] und [54] wird beschrieben, dass beim Wasserstoff/Luft-System frühe Zündkerne stets in zur Luftseite konkav gekrümmten Mischungszonenbereichen auftreten.

Sreedhara et al. [112] untersuchten die Selbstzündung für ein *n*-Heptan/Luft-System mittels dreidimensionaler DNS-Rechnungen und unter Verwendung eines 4-Schritt-Mechanismus. Diese Untersuchungen bestätigen die Abhängigkeit der Zündorte vom Mischungsbruch und der lokalen skalaren Dissipationsrate. Darüber hinaus wird die Selbstzündung bei diesen Untersuchungen stets im Zentrum von Wirbelstrukturen beobachtet.

Hinsichtlich der Abhängigkeit der Zündverzugszeit von der Turbulenz finden sich in der Literatur widersprüchliche Ergebnisse. Hilbert et al. [51] zeigten anhand von DNS-Rechnungen, dass die Zündverzugszeit im turbulenten Fall stets kürzer ist als im

laminaren Fall, während in der Arbeit von Im et al. [54] bei hoher Turbulenz eine gegenüber dem laminaren Fall verzögerte Zündung beobachtet wird.

Für die Modellierung der Selbstzündung in nicht vorgemischten turbulenten Systemen sind in der Literatur zahlreiche theoretische Modelle vorgeschlagen worden. Zu den wichtigsten zählen das Joint-Scalar-PDF-Modell [62], das Conditional-Moment-Closure-Modell [69, 111] und das instationäre Flamelet-Modell [85, 92].

Beim Flamelet-Modell, das in Kapitel 3 ausführlich beschrieben wird, wird davon ausgegangen, dass die chemischen Reaktionen in dünnen Schichten ablaufen und getrennt von der Strömung betrachtet werden dürfen. Ob dieses Modell in Anbetracht der langsam ablaufenden chemischen Reaktionen im Niedrigtemperaturbereich für die Beschreibung der Zündung geeignet ist, wird in der Literatur jedoch kontrovers diskutiert [69, 90].

## Übersicht

In der vorliegenden Arbeit wird die Selbstzündung in laminaren und gewellten Gegenstromdiffusionsflammen experimentell und theoretisch untersucht. Als Modellkraftstoff wurde *n*-Heptan ( $C_7H_{16}$ ) verwendet, dessen Cetan-Zahl von etwa 56 im für Dieselkraftstoffe typischen Bereich liegt. Als langkettiges Alkan zeichnet sich *n*-Heptan darüber hinaus durch die mit dem NTC in Zusammenhang stehende zweistufige Zündung (*two-stage ignition*) aus.

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen standen vor allem die folgenden Fragestellungen im Vordergrund:

- Welche globalen Parameter bestimmen die Selbstzündung von Gegenstromdiffusionsflammen?
- In welcher Weise unterscheidet sich die Selbstzündung in gewellten Mischungszonen von der Selbstzündung in ungestörten laminaren Mischungszonen?
- Lassen sich in den gewellten Mischungszonen lokale Zündkerne experimentell nachweisen, und welche Größen bestimmen die Orte, an denen diese auftreten?
- Können die aus den Störungen resultierenden Effekte im Rahmen des Flamelet-Modells berücksichtigt werden?

---

Im folgenden Kapitel werden zunächst die im Zusammenhang mit der Flamelet-Theorie wichtigen Größen und Begriffe erläutert. Anschließend erfolgt ein Überblick über die Oxidationseigenschaften des *n*-Heptans.

Die Beschreibung der Modellierung in Kapitel 3 wurde dem experimentellen Teil vorangestellt, da die in dieser Arbeit vorgeschlagene Methode zur Bestimmung des Mischungsbruchs mittels der Rayleigh-Streulichtmesstechnik auf Flamelet-Profile zurückgreift. Im Vorgriff auf den experimentellen Ergebnisteil wird in Kapitel 3.3 eine Modellerweiterung für das Flamelet-Modell hergeleitet, welche den Einfluss von Krümmungseffekten auf die Selbstzündung berücksichtigt.

In Kapitel 4 und 5 werden der Versuchsaufbau sowie die theoretischen Grundlagen und die Auswerteverfahren der angewandten Messtechniken beschrieben. Der Schwerpunkt liegt hierbei auf der Beschreibung der optischen Messtechniken wie der Rayleigh-Streulichtmesstechnik, der Laser-induzierten Fluoreszenz und der Particle Image Velocimetry.

Im Ergebnisteil werden zunächst die experimentellen Ergebnisse diskutiert. Dabei wird die Selbstzündung in den laminaren Mischungszonen der Selbstzündung in den gewellten Mischungszonen gegenübergestellt. Einen Schwerpunkt bildet dabei die Untersuchung der lokalen Krümmung der Isokonturen des Mischungsbruchs. Anschließend wird der Einfluss wichtiger Parameter auf die Selbstzündung anhand von Flamelet-Rechnungen diskutiert. Dabei wird insbesondere der Effekt des in dieser Arbeit hergeleiteten Krümmungsterms untersucht und bewertet.



## 2 Grundlagen der Selbstzündung von *n*-Heptan-Diffusionsflammen

Grundvoraussetzung für einen Oxidationsprozess ist, dass Brennstoff und Oxidator als Gemisch vorliegen. In nicht vorgemischten Verbrennungssystemen sind Brennstoff- und Oxidatorstrom zunächst getrennt. Zwischen den beiden Strömen bilden sich jedoch infolge diffusiver Transportprozesse Mischungszonen aus. Dies soll am Beispiel der Gegenstromanordnung erläutert werden.

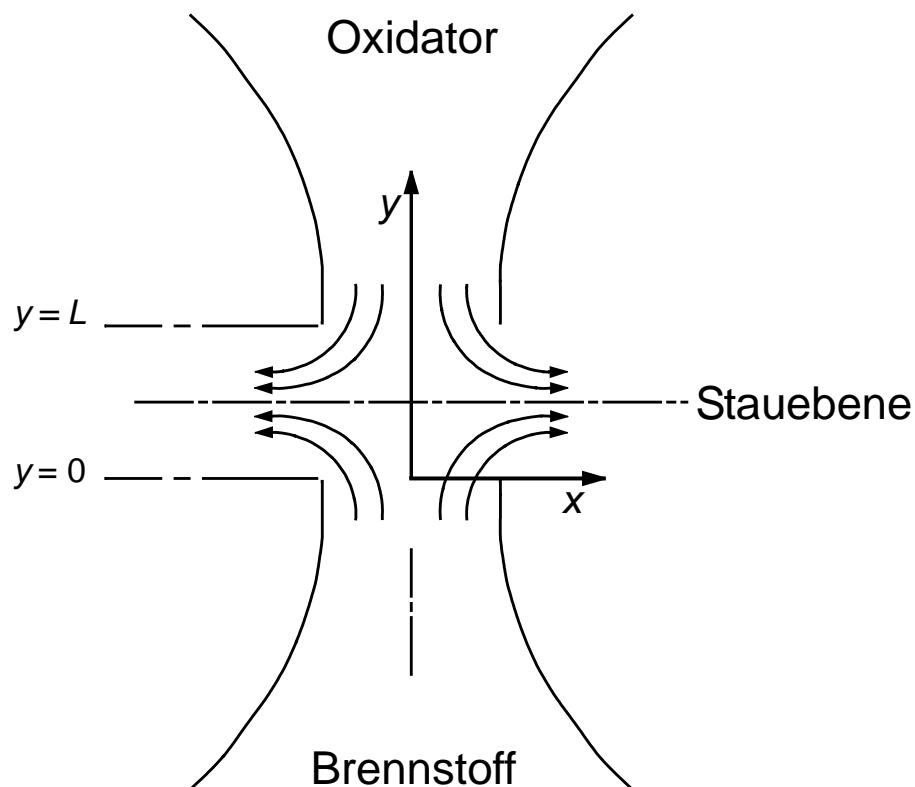


Abbildung 2.1 Gegenstromanordnung.

Bei der in Abbildung 2.1 schematisch dargestellten Gegenstromanordnung bildet sich zwischen einem heißen Oxidator- und einem kalten Brennstoffstrom eine horizontale

Staubebene aus, in deren Umgebung sich die beiden Ströme diffusiv mischen. Wird diese Mischungszone näherungsweise als eindimensional betrachtet, so können die Konzentrationen der chemischen Komponenten und die Temperatur als Funktionen des Abstands zur Brennstoffdüse beschrieben werden. In Abbildung 2.2 sind solche Profile für den Fall inerter Mischung, das heißt ohne chemische Reaktionen, exemplarisch dargestellt. Die in dieser Abbildung eingezeichnete diffusive Mischungszone zeichnet sich durch ausgeprägte Temperatur- und Konzentrationsgradienten aus. Die Dicke der Mischungszone wird maßgeblich von den Diffusionseigenschaften der Komponenten beziehungsweise von der Wärmeleitfähigkeit der Gasmischung sowie von der für die Diffusionsvorgänge zur Verfügung stehenden Verweilzeit bestimmt. Ist die im Wesentlichen vom konvektiven Transport bestimmte Verweilzeit klein gegenüber den diffusiven Zeitskalen, so ist die diffusive Mischungszone dünn.

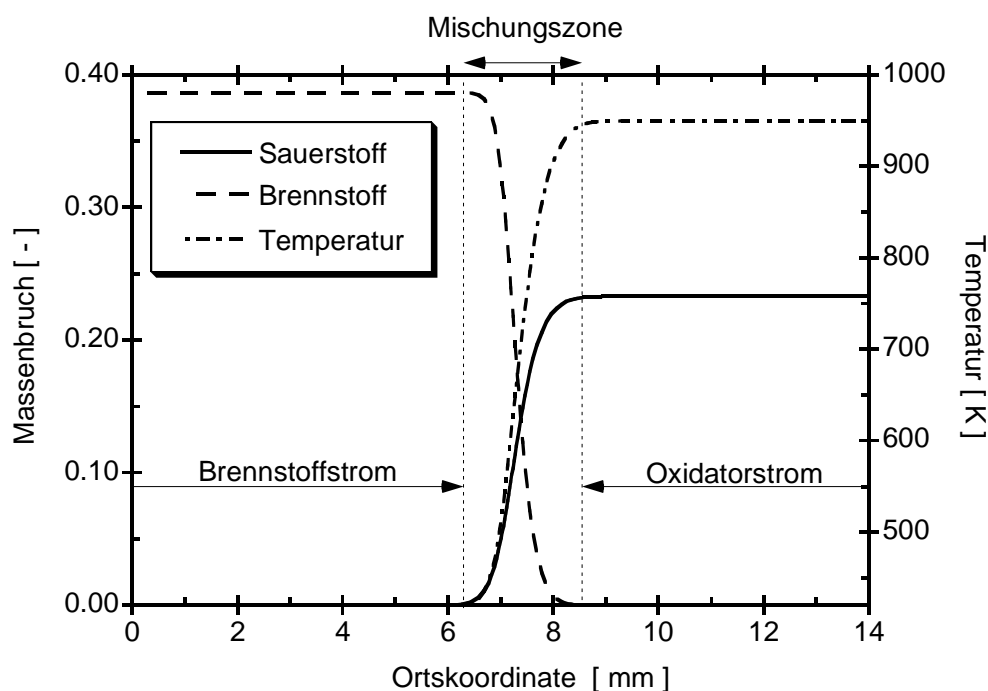


Abbildung 2.2 Massenbrüche von Sauerstoff und Brennstoff sowie Temperatur in der Mischungszone zwischen kaltem Brennstoff- und heißem Oxidatorstrom ohne chemische Reaktion.

Wird die Oxidortemperatur ausgehend von der nicht reagierenden Mischung schrittweise erhöht, so kommt es schließlich zur Selbstzündung. Nach erfolgter Selbstzündung bildet sich, wie in Abbildung 2.3 exemplarisch dargestellt, in der Mischungszone eine Diffusionsflamme aus, die in der Nähe stöchiometrischer Mischung ein lokales Temperaturmaximum hervorruft.