

**Sz**

13301=2

Verfahrenstechnik

---

**Dirk Reinelt**

**Numerische Simulation der Zündung  
von heterogenen und homogenen  
Reaktionen beim Abbrand einer  
angeströmten Schüttung**

---

Verlag Shaker

S2 13304 = 2

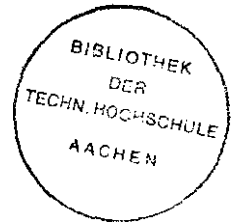
**Numerische Simulation der Zündung  
von heterogenen und homogenen Reaktionen  
beim Abbrand einer angeströmten Schüttung**

Von der Fakultät für Maschinenwesen  
der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen  
zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktors der Ingenieurwissenschaften  
genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Diplom-Ingenieur  
Dirk Reinelt

aus Weidenau, jetzt Siegen



Referent: Universitätsprofessor em. Dr.-Ing. G. Adomeit  
Korreferent: Universitätsprofessor Dr.-Ing. U. Renz

Tag der mündlichen Prüfung: 26. April 1995

D 82 (Diss. RWTH Aachen)

Berichte aus der Verfahrenstechnik

**Dirk Reinelt**

**Numerische Simulation der Zündung von  
heterogenen und homogenen Reaktionen beim  
Abbrand einer angeströmten Schüttung**

D 82 (Diss. RWTH Aachen)

**Verlag Shaker  
Aachen 1995**

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

*Reinelt, Dirk:*

Numerische Simulation der Zündung von heterogenen und homogenen  
Reaktionen beim Abbrand einer angeströmten Schüttung / Dirk Reinelt.

- Als Ms. gedr. -

Aachen : Shaker, 1995

(Berichte aus der Verfahrenstechnik)

Zugl.: Aachen, Techn. Hochsch., Diss., 1995

ISBN 3-8265-0780-0

Copyright Verlag Shaker 1995

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen  
oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungs-  
anlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Als Manuskript gedruckt. Printed in Germany.

ISBN 3-8265-0780-0

ISSN 0945-1021

Shaker Verlag GmbH, Hubertusstr. 40, 52064 Aachen

Telefon: 0241 / 406351 - Telefax: 0241 / 406354

## **Vorwort**

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Allgemeine Mechanik an der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen.

Herrn Professor Dr.-Ing. G. Adomeit danke ich herzlich für die Stellung des Themas, seinen fachlichen Rat und viele hilfreiche Anregungen. Sein stets förderndes Interesse am Fortgang des Projekts und zahlreiche Diskussionen haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Mein Dank gilt weiterhin Herrn Professor Dr.-Ing. U. Renz für die bereitwillige Übernahme des Korreferats und sein wohlwollendes Interesse an dieser Arbeit.

Allen Studien- und Diplomarbeitern, die zum Entstehen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben, danke ich für ihre Hilfe. Bei meinen Kollegen bedanke ich mich für ihre Unterstützung, die gute Zusammenarbeit und das ausgezeichnete Arbeitsklima.

# Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis . . . . .	i
Nomenklatur . . . . .	ii
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Bisherige Arbeiten</b>	<b>4</b>
<b>3 Mathematische Modellierung und numerische Methode</b>	<b>13</b>
3.1 Staupunktströmung . . . . .	15
3.2 Schüttung . . . . .	18
3.3 Rand- und Kopplungsbedingungen . . . . .	26
3.4 Numerische Methode . . . . .	30
<b>4 Zündung der heterogenen Reaktionen</b>	<b>33</b>
4.1 Charakteristische Effekte . . . . .	34
4.2 Parametervariationen . . . . .	40
4.3 Berechnung der Zündung nach Frank-Kamenetskii . . . . .	46
4.4 Einfluß der Randbedingungen am geschlossenen Ende der Schüttung . . . . .	48
<b>5 Heterogene und homogene Zündung</b>	<b>52</b>
5.1 Charakteristische Effekte . . . . .	52
5.2 Parametervariationen . . . . .	58
5.3 Vergleich mit den Ergebnissen für eine geschlossene Wand . . . . .	68
<b>6 Zusammenfassung</b>	<b>71</b>
<b>7 Literaturverzeichnis</b>	<b>74</b>
<b>8 Anhang</b>	<b>83</b>
8.1 Verifikation des Modells für die Staupunktströmung . . . . .	83
8.2 Verifikation des Modells für die Schüttung . . . . .	86

## Nomenklatur

$A$	Oberfläche, Querschnittsfläche	$[\text{m}^2]$
$a$	Staupunktparameter	$[\text{1/s}]$
$c_p$	spezifische Wärmekapazität	$[\text{J/kg K}]$
$c_1$	Hilfsgröße in Impulsgleichung	$[\text{1/m}^2]$
$c_2$	Hilfsgröße in Impulsgleichung	$[\text{1/m}]$
$D_i$	Diffusionskoeffizient der Komponente $i$	$[\text{m}^2/\text{s}]$
$E_j$	Aktivierungsenergie der Reaktion $j$	$[\text{J/kmol}]$
$f$	dimensionslose Stromfunktion; $f_\eta = \frac{u}{u_c}$	$[-]$
$h$	spezifische Enthalpie	$[\text{J/kg}]$
$h_{i,0}$	spezifische Referenzenthalpie der Komponente $i$	$[\text{J/kg}]$
$H_i$	dimensionslose Enthalpie der Komponente $i$	$[-]$
$k_j$	Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizient der Reaktion $j$	$[\text{m/s}]$
$k_{0,j}$	Frequenzfaktor der Reaktion $j$	$[\text{m/s}]$
$\ell$	Chapman-Rubesin-Parameter = $(\rho\mu)/(\rho\mu)_r$	$[-]$
$L$	Länge der Schüttung	$[\text{m}]$
$L'$	linkes Ende des Rechengebiets	$[\text{m}]$
$Le_i$	Lewis-Zahl der Komponente $i = \rho D_i c_p / \lambda$	$[-]$
$m$	Masse	$[\text{kg}]$
$\dot{m}_c$	Massenabbrand des Kohlenstoffs	$[\text{kg/s}]$
$M_i$	Molmasse der Komponente $i$	$[\text{kg/kmol}]$
$\bar{M}$	mittlere Gasmolmasse	$[\text{kg/kmol}]$
$p$	Druck	$[\text{Pa}]$
$Pr$	Prandtlzahl = $\mu c_p / \lambda$	$[-]$
$\dot{q}$	der Schüttungsoberfläche von außen zugeführter Wärmestrom	$[\text{W/m}^2]$
$\dot{q}_R$	Strahlungsaustausch der Oberfläche der Schüttung mit der Umgebung	$[\text{W/m}^2]$
$R$	allgemeine Gaskonstante	$[\text{J/kmol K}]$
$r_p$	Partikelradius	$[\text{m}]$
$r_j$	Reaktionsrate der Reaktion $j$	$[\text{kmol/m}^3\text{s}]$
$t$	Zeit	$[\text{s}]$
$T$	Temperatur, falls Gas- und Partikeltemperatur gleich	$[\text{K}]$
$T_g$	Gastemperatur	$[\text{K}]$
$T_p$	Partikeltemperatur	$[\text{K}]$
$u$	(Gas-) Geschwindigkeit parallel zur Oberfläche	$[\text{m/s}]$
$v_g$	(Gas-) Geschwindigkeit normal zur Oberfläche	$[\text{m/s}]$
$v_p$	Partikelgeschwindigkeit	$[\text{m/s}]$
$v_{\text{rel}}$	Relativgeschwindigkeit = $v_g - v_p$	$[\text{m/s}]$
$V$	Volumen	$[\text{m}^3]$
$V$	dimensionslose Geschwindigkeit normal zur Oberfläche	$[-]$
$w_{ij}$	Produktionsrate der Komponente $i$ in der Reaktion $j$	$[\text{kg/m}^3\text{s}]$
$W_i$	dimensionslose homogene Produktionsrate der Komponente $i$	$[-]$

$x$	Koordinate parallel zur Oberfläche	[m]
$y$	Koordinate normal zur Oberfläche	[m]
$Y_i$	Massenbruch der Komponente $i$	[-]

### Griechische Symbole

$\alpha$	konvektiver Wärmeübergangskoeffizient	[W/m <sup>2</sup> K]
$\eta$	dimensionslose Grenzschichtkoordinate (normal zur Oberfläche), siehe Gl. (3.9)	[-]
$\theta$	dimensionslose Temperatur	[-]
$\lambda_g$	Wärmeleitfähigkeit der Gasphase	[W/m K]
$\lambda_p$	Wärmeleitfähigkeit der Partikelphase	[W/m K]
$\mu$	dynamische Viskosität	[kg/m s]
$\nu_{ij}$	stöchiometrischer Koeffizient	[-]
$\rho, \rho_g$	Gasdichte	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\rho_p$	Partikeldichte (scheinbare Dichte) = $(1 - \phi_i)\rho_s$	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\rho_s$	Partikeldichte (wahre Dichte)	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\sigma$	Stefan-Boltzmann-Konstante	[W/m <sup>2</sup> K <sup>4</sup> ]
$\tau$	dimensionslose Zeit, $\tau = t \cdot a$	[-]
$\phi$	Schüttungsporosität = $V_g/V, = A_g/A$	[-]
$\phi_i$	innere Porosität eines Partikels	[-]

### Indizes

$0$	Oberfläche der Schüttung
$0^-$	links von der Oberfläche (Schüttungsseite)
$0^+$	rechts von der Oberfläche (Anströmseite)
$e$	Grenzschichttrand
$eff$	effektiv
$g$	Gas
$ges$	gesamt
$het$	heterogene Reaktion (Feststoff-Gas)
$hom$	homogene Reaktion (Gas-Gas)
$i$	Komponente $i$
$j$	Reaktion $j$
$L$	linkes Ende der Schüttung
$L'$	linkes Ende des Rechengebiets
$max$	maximal
$p$	Partikel
$r$	Referenzzustand
$S$	Oberfläche der Schüttung
$w$	Wand; Oberfläche der Schüttung
$\eta$	Ableitung nach der Grenzschichtkoordinate $\eta$
$-$	konstante oder gemittelte Größe

# 1 Einleitung

Die Zündung und der Abbrand von porösen festen Materialien stellen einen wichtigen Aspekt im Rahmen der Verbrennungsprozesse im allgemeinen dar. Es können dabei heterogene Reaktionen zwischen dem Feststoff und dem Gas im Inneren des Materials und an seiner Oberfläche stattfinden. Zusätzlich können homogene Reaktionen zwischen Gaskomponenten im Inneren und außerhalb des porösen Materials bzw. der Schüttung ablaufen. Durch die Zündung und das Löschen dieser Reaktionen kann es zu Unstetigkeiten im Abbrandverhalten (Temperaturen, Wärmeströme, Massenabbrand, Gaszusammensetzung) kommen, und es können, abhängig von den Anfangsbedingungen, mehrere stationäre, physikalisch stabile Lösungen existieren. Wenn man unter dem Begriff „Zündung“ ein verstärktes Einsetzen bzw. Ablaufen von Reaktionen versteht, so ist dies nicht zwangsläufig mit un stetigen Änderungen beim Abbrandverhalten verbunden, sondern es kann sich auch um einen kontinuierlichen Prozeß handeln. Solche Vorgänge haben eine Bedeutung in so unterschiedlichen Bereichen wie bei sicherheitstechnischen Überlegungen, bei der Vergasung von Kohle, bei der thermischen Behandlung von Müll und beim Abbrand von Festtreibstoffen.

Wenn ein Feststoff durch eine externe Wärmequelle in einer oxidierenden Atmosphäre erwärmt wird, laufen chemische Prozesse ab, die im allgemeinen durch eine zweistufige Kinetik beschrieben werden: In einem Pyrolyseschritt zersetzt sich das Material in einen festen und einen gasförmigen Anteil, den Koks und die flüchtigen Gase. In einem zweiten Schritt reagiert der Koks mit dem Oxidator, es bilden sich Abgase (und unter Umständen auch Asche). Nach der Zündung dieser Reaktionen liegt zunächst ein Schwelbrand, das ist ein flammloser Abbrand, vor [1].

Typisch für Schwelbrände sind der geringe Sauerstoffbedarf, die niedrigen Temperaturen und die niedrigen Ausbreitungsgeschwindigkeiten. Schwelbrände reagieren stark auf Wärmeverluste; diese können dazu führen, daß ein Schwelbrand verlöscht. Aber die schwelende Verbrennung kann auch bei nur geringer Versorgung mit Sauerstoff existieren und entsteht dadurch oft in Situationen, in denen Flammen aufgrund eines Sauerstoffmangels verlöschen. Die Temperaturen in der Reaktionszone sind mit 300-700 °C deutlich niedriger als die Temperaturen in Flammen, was unter anderem dazu führt, daß niedrige Reaktionsgeschwindigkeiten und damit kleine Ausbreitungsgeschwindigkeiten vorliegen (in der Größenordnung von wenigen Millimetern pro Minute) [1-3].

Erfahrungsgemäß haben alle Materialien, die schwelen können, ein großes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen. Sie sind außerdem porös und durchlässig für Gasströmungen. So verschiedene organische Materialien wie Kohle, Zellulose und Kunststoffe können diese Voraussetzungen erfüllen. Vom sicherheitstechnischen Standpunkt aus gesehen, stellt die schwelende Verbrennung von festen Materialien ein beträchtliches Gefahrenpotential dar: durch den Prozeß werden giftige und brennbare Gase frei, wodurch der Schwelbrand zusätzlich in einen flammenden Brand umschlagen kann [1].

Die Gase, die durch die Reaktionen im Inneren des Feststoffs entstehen, werden nach außen transportiert, wo sie sich mit der Luft mischen. Liegt die Zusammensetzung dieser Mischung vor der Oberfläche des festen Materials innerhalb der Zündgrenzen und ist die Temperatur des Gases hinreichend hoch, kommt es zur Zündung der homogenen Reak-

tionen. Das Ansteigen der Gastemperatur kann dabei im Fall der Selbstzündung durch Wärmetransport von der heißen Feststoffoberfläche, einen heißen Gasstrom oder Strahlungsabsorption des Gases erfolgen. Durch Funken oder eine Pilotflamme können die Gase fremdgezündet werden. Die Zündung und Löschung der homogenen Reaktionen können ebenso wie die der heterogenen Reaktionen zu nicht-eindeutigen stationären Lösungen beim Abbrand führen.

Trotz der Bedeutung der Kopplung dieser Prozesse sind solche Vorgänge bisher wenig untersucht worden. Schwelbrände wurden experimentell häufig studiert, wobei meistens aber die heterogene Zündung bzw. die Ausbreitungsmechanismen im Vordergrund standen. Der Umschlag in die flammende Verbrennung wurde teilweise beobachtet, aber nur selten systematisch untersucht. Ein numerisches Modell, das diesen Umschlag (das heißt die Zündung der homogenen Reaktionen) beinhaltet, existiert bisher nicht [1, 4].

Das Zünd- und Löschverhalten von heterogenen und homogenen Reaktionen wurde numerisch für den Abbrand eines Einzelpartikels in ruhender Luft [5, 6] und für eine reagierende, geschlossene Oberfläche in einer Strömung untersucht [7], siehe auch Überblick in [8]. Es existieren einzelne Untersuchungen zum Abbrand eines porösen Materials in einer Strömung. In diesen Fällen wurden aber entweder nur die Schüttung oder die Anströmung detailliert modelliert und der andere Teil des Gesamtsystems extrem vereinfacht. Dies ist nicht hinreichend, da das Abbrandverhalten eines Feststoffs aus den Wechselwirkungen physikalischer und chemischer Prozesse im Inneren des Materials und in der Gasphase vor seiner Oberfläche resultiert.

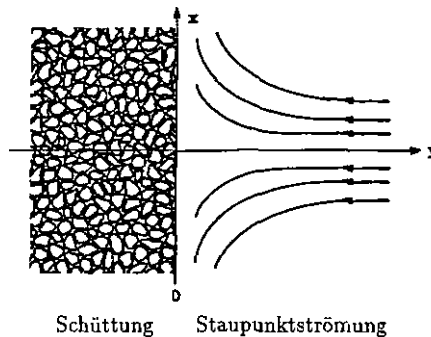


Abbildung 1.1: Schüttung in Staupunktströmung

In der vorliegenden Arbeit wird ein Modell für die Simulation des Abbrandes einer Kohlenstoff-Schüttung in einer Staupunktströmung vorgestellt (Abb. 1.1). Dabei werden die Transportvorgänge von Masse und Energie im Inneren der Schüttung und in der Grenzschicht der Anströmung, heterogene Reaktionen in der Schüttung und eine homogene Reaktion in der Grenzschicht berücksichtigt. Die Prozesse in der Schüttung und in der Anströmung werden an der Oberfläche der Schüttung gekoppelt durch die Konvektion und

Diffusion von Masse und Energie, Strahlungsaustausch der Oberfläche mit der Umgebung und heterogene Reaktionen an der Oberfläche der Schüttung. Dadurch ist es möglich, die Vorgänge in der Schüttung und in der Anströmung zu berechnen und ihren gegenseitigen Einfluß zu bestimmen. Es werden von der Größenordnung her realistische Werte für physikalische Größen und kinetische Parameter benutzt, der Schwerpunkt der Arbeit liegt aber auf dem Studium der qualitativ möglichen Effekte.

In Kapitel 2 wird zunächst eine Übersicht über den Stand der Forschung gegeben. Dabei werden vor allem experimentelle und numerische Untersuchungen auf dem Gebiet der schwelenden Verbrennung besprochen, aber auch Gebiete wie Kohlevergasung oder Zündung von heterogenen und homogenen Reaktionen bei Einzelpartikeln und Oberflächen eingeschlossen. Die verwendete Kinetik, das mathematische Modell und die zur Lösung verwendete numerische Methode werden in Kapitel 3 vorgestellt. Die Modellierung beschränkt sich auf die Staupunktlinie. Die Erhaltungsgleichungen werden für die Schüttung und die Anströmung getrennt formuliert und durch Bilanzen an der Oberfläche der Schüttung gekoppelt. Die Lösung erfolgt mit einer modifizierten Form des PISO-Verfahrens (Pressure Implicit with Splitting of Operators) [9-11]. Die Zündung der heterogenen Reaktionen (Kap. 4) und die anschließende Zündung der homogenen Reaktion (Kap. 5) werden diskutiert und die wesentlichen Einflußgrößen herausgestellt. Abschließend werden in Kapitel 6 neben einer Zusammenfassung Vorschläge gemacht, wie das Modell weiterentwickelt werden könnte.

## 2 Bisherige Arbeiten

Die ersten Arbeiten zur schwelenden Verbrennung wurden bereits in den 50er Jahren von Cohen et al. [12] und Palmer [13] durchgeführt. In der Zwischenzeit sind zahlreiche Untersuchungen entstanden. Einen ersten kurzen Überblick gibt Williams [14]. Der Artikel beschäftigt sich mit der Ausbreitung von Bränden im allgemeinen, Schwelbrände stellen dabei einen Teilaspekt dar.

Hilado et al. [15, 16] haben eine Literaturübersicht mit 87 Texten zur schwelenden Verbrennung veröffentlicht. Allerdings werden die Quellen bei Hilado nicht besprochen, sondern nur genannt, was den direkten Nutzen der Aufstellung einschränkt.

Eine Darstellung der Zündung eines Schwelbrandes, seiner Ausbreitung und des Umschlags in die flammende Verbrennung gibt Drysdale [17]. Er berücksichtigt dabei physikalische und chemische Einflüsse und zitiert sowohl experimentelle als auch theoretische Untersuchungen.

Die umfassendste Studie zu Schwelbränden stammt von Ohlemiller [1]. In dem Text werden alle bei der schwelenden Verbrennung ablaufenden Prozesse im Detail besprochen und der vorhandene Kenntnisstand bezüglich dieser Teilaspekte aufgezeigt. Im Mittelpunkt steht die Aufstellung eines mathematischen Modells zur Beschreibung der Ausbreitung von Schwelbränden, welches aber nicht gelöst werden soll, sondern nur als Referenzmodell dient, mit dem Ohlemiller in der Literatur veröffentlichte Modelle vergleicht. Dabei werden auch zahlreiche experimentelle Untersuchungen zitiert.

Einen Überblick über experimentelle Untersuchungen vermitteln Braunschädel [18] und Wagner [19]. Der aktuelle Kenntnisstand auf dem Gebiet der schwelenden Verbrennung und des Umschlags in die Entflammung wird von Fernandez-Pello [4] umrissen.

Im Rahmen dieser Literaturübersicht werden zusätzlich zu dem Gebiet der schwelenden Verbrennung auch Texte aus den Gebieten der Modellierung der Kohlevergasung und der Zündung von heterogenen und homogenen Reaktionen genannt.

### Schwelende Verbrennung - Experimente

Die experimentellen Untersuchungen zur schwelenden Verbrennung beschäftigen sich mit den Teilgebieten Zündung des Schwelbrandes, Ausbreitung bzw. ihre Unterdrückung und Umschlag in die flammende Verbrennung. Die wesentlichen Ergebnisse und Einflußgrößen sollen hier genannt werden.

Chan et al. [20] untersuchten die Zündung von Baumwollschichten auf heißen Oberflächen. Die Autoren machen keine Unterscheidung zwischen der Zündung von heterogenen bzw. homogenen Reaktionen. Dies kommt wahrscheinlich daher, daß in den meisten Experimenten die Zündung des Schwelbrandes und die Entstehung der Flammen nahezu zeitgleich auftraten. Die Ergebnisse zeigen, daß die Zündtemperatur und die Zeit bis zur Zündung mit steigender Packungsdichte und zunehmender Schichtdicke sinken. Diese Ergebnisse stehen in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Ohlemiller et al. [21] und können auch mit der Theorie von Frank-Kamenetskii erklärt werden (siehe Kap. 4.3). Ohlemiller

[21] untersuchte ebenfalls die Zündung von Materialien (Zellulose) an heißen Oberflächen. Er fand dabei, daß die Schichtdicke den größten Einfluß auf die Zündtemperatur hat. Dem Material beigemischte Additive zur Schwelhemmung haben dagegen kaum einen Einfluß auf die Zündtemperatur, sondern nur auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Schwelbrandes. Auch der Einfluß von anderen Parametern, wie Umgebungstemperatur oder Dichte des Materials, ist gering.

Den weitaus größten Raum nehmen in der Literatur die experimentellen Untersuchungen zum Ausbreitungsverhalten von Schwelbränden ein [18,22-39]. Diese Arbeiten unterscheiden sich im wesentlichen durch die verwendeten Materialien (z.B. Zelluloseschichten, zu Zylindern gerolltes Papier, Polyurethan-Schaum), der Anordnung der Schüttung (horizontal, vertikal) und der Strömungsart (durchströmt oder überströmt; Strömung in oder gegen Ausbreitungsrichtung des Brandes; keine aufgeprägte Strömung). Besonders hervorzuheben sind die Arbeiten der Gruppen um Ohlemiller [32-34] und um Fernandez-Pello [35-39]. Diese beschäftigen sich systematisch mit der Bestimmung von Einflußgrößen.

Eine Staupunktconfiguration wird bei den Experimenten sehr selten benutzt, obwohl sie mathematisch leicht zu beschreiben ist und sich daher für Vergleiche zwischen Theorie und Experiment anbietet. Lediglich Takahashi et al. [25] und Braunschädel [18] wählten eine Staupunktanströmung, beschäftigten sich aber in ihren Texten nur mit der experimentellen Seite und nannten keine mathematische Modellierung.

Die qualitativen Ergebnisse in allen Untersuchungen ergeben übereinstimmend, daß die Schwelbrandausbreitung durch zwei Vorgänge gesteuert wird: den Wärmetransport ins unverbrannte Material und den Sauerstofftransport in die Reaktionszone. Wichtige Parameter sind also beispielsweise die effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung und Wärmesenken, wie sie durch die Trocknung des Materials oder einen endothermen Pyrolyseschritt vorhanden sein können. Auftriebskräfte bzw. die Richtung einer erzwungenen Strömung, der Strömungswiderstand in der Schüttung und andere Größen bestimmen den Sauerstofftransport. Entsprechend diesen Mechanismen kann versucht werden, die Ausbreitung des Brandes zu verhindern. In das Material eingezogene Metallfolien leiten die Wärme ab [3], verschlossene Poren verhindern das Eindringen von Sauerstoff [3], eine Behandlung mit Borsäure verlangsamt kinetisch die Brandausbreitung [33, 40].

Unter geeigneten Randbedingungen können die aus der Schüttung austretenden Gase zünden, der Schwelbrand schlägt in einen flammenden Abbrand um. Dieser Umschlag ist häufig beobachtet worden. In einigen Untersuchungen [13, 20, 22, 23, 36, 41, 42] wurde er nur festgestellt, ohne daß Erklärungen für den bestimmenden Mechanismus angegeben wurden. Gann [3] und Drysdale [17] vermuteten, daß es eine minimale Produktionsrate von flüchtigen Gasen gebe, unterhalb derer kein Umschlag möglich sei. Leisch [43, 44] beobachtete, daß zunächst kleine, lokale Vertiefungen in der Oberfläche der Schüttung auftraten bevor es zum Umschlag kam. Entsprechende Beobachtungen wurden auch von Ohlemiller [34] gemacht. Dies läßt vermuten, daß durch die konkave Struktur der Vertiefungen die Strahlungsverluste der Feststoffoberfläche verringert werden und sich brennbare Gase sammeln können. Durch diese beiden Effekte wird der Umschlag begünstigt. Die Bedeutung der zur Verfügung stehenden Zündenergie wurde von Braunschädel [18] bestätigt. Er konnte zeigen, daß sich die Schwelgase zwar nur bei gewissen Randbedingungen selbst entzündeten, daß sie aber immer fremdzündbar waren. Die Schwierigkeit,

die physikalischen Mechanismen klar zu bestimmen, wird dadurch deutlich, daß auch in neueren Untersuchungen [28, 37, 45] nur globale Erklärungsversuche, wie die Abhängigkeit von dem Sauerstofftransport und der zur Verfügung stehenden Wärme, genannt werden.

### Schwelende Verbrennung - Theorie

Der großen Zahl von experimentellen Untersuchungen steht eine deutlich kleinere Zahl von theoretischen Untersuchungen gegenüber. Die meisten Modelle versuchen, die Ausbreitung von Schwelbränden zu beschreiben. Mit der Zündung der heterogenen Reaktionen in einer Schüttung beschäftigen sich nur wenige Autoren, die gleichzeitige Betrachtung von heterogenen Reaktionen in einer Schüttung und homogenen Reaktionen in der Gasphase außerhalb der Schüttung ist bisher nicht erfolgt. Demzufolge existiert kein Modell, mit dem der Umschlag von schwelender in flammende Verbrennung beschrieben werden kann. Wie bereits erwähnt, gibt Ohlemiller [1] einen Literaturüberblick über theoretische Modelle (bis 1985) und stellt selber ein umfassendes Modell vor, das aber nicht gelöst wird, sondern nur als Referenzfall dient. Hier werden daher im wesentlichen Modelle besprochen, die Ohlemiller nicht nennt bzw. die nach 1985 veröffentlicht wurden.

Die einfachste Form sind analytische bzw. phänomenologische Modelle. Sie werden oft in Verbindung mit Experimenten aufgestellt, um die dort gemachten Beobachtungen zu erklären bzw. zu bestätigen. Kinbara et al. [46] benutzen die eindimensionale Form der Energiegleichung und verbinden sie mit empirischen Annahmen u.a. zur Sauerstoffdiffusion. Sie erhalten so eine Gleichung für die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Schwelbrandes in Abhängigkeit von Materialgrößen, einem Wärmeübergangskoeffizienten an der Oberfläche und Temperaturen (Zündtemperatur, Umgebungstemperatur). Die Ergebnisse dieser Modellierung liefern nach Angabe der Autoren eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Werten, die sie bei eigenen (zweidimensionalen) Versuchen ermittelt haben.

Ohlemiller et al. [21] haben die Zündung von Zelluloseschichten auf einer heißen Oberfläche untersucht und eine gute Übereinstimmung der Meßergebnisse mit einer theoretischen Analyse in Anlehnung an die Vorgehensweise von Frank-Kamenetskii festgestellt.

Adler et al. [47] beschreiben die zweidimensionale Ausbreitung eines Schwelbrandes parallel zu der Oberfläche einer Schüttung. Sie setzen dabei voraus, daß der Vorgang durch die Sauerstoffdiffusion in der Schüttung kontrolliert wird. Entsprechend setzen sie die zweidimensionale, instationäre Speciesgleichung an, die als Ergebnis liefert, daß sich im Schüttgut eine parabolische Reaktionsfront einstellt. Ein entsprechendes Ergebnis erzielte auch Kerr [48] mit einem sehr ähnlichen, numerischen Ansatz. Dies steht in Übereinstimmung mit experimentellen Beobachtungen von Ohlemiller [49].

Das erste numerische Modell stammt von Moussa et al. [22]. Sie betrachten ein eindimensionales Modell einer horizontal angeordneten Schüttung in ruhender Umgebung mit einer zweistufigen Kinetik: ein Pyrolyseschritt ( $\text{Zellulose} \rightarrow \text{Koks} + \text{flüchtige Gase}$ ) und ein Oxidationsschritt ( $\text{Koks} + \text{O}_2 \rightarrow \text{Gas} + \text{Wärme für Pyrolyseschritt}$ ). Die Schritte laufen in getrennten Zonen ab. Wenn die Prozesse im Gleichgewicht sind, resultiert dies in einer konstanten Ausbreitungsgeschwindigkeit; andernfalls verlöscht der Brand. Gelöst werden die Kontinuitätsgleichung für die unverbrauchte Zellulose, den Koks und die Gase und

eine kombinierte Energiegleichung für Feststoff und Gas. Zusammen mit Annahmen über die Sauerstoffversorgung und die Reaktionswärme ergeben sich Ergebnisse für die Ausbreitungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit der Sauerstoffkonzentration an der Oberfläche. Es wird eine Steigerung der Temperatur in der Schüttung und der Ausbreitungsgeschwindigkeit mit steigender Sauerstoffkonzentration festgestellt. Dies wurde von den Autoren auch in eigenen Experimenten [22] beobachtet.

Bei Muramatsu et al. [50] wird der Abbrand einer Zigarette betrachtet, indem eine horizontale, eindimensionale Schüttung ohne erzwungene Konvektion modelliert wird. Allerdings sieht die Kinetik nur die Verdunstung der Feuchte und die Pyrolyse des Tabaks vor, es gibt keine Oxidation. Die Lösung von Kontinuitäts- und Energiegleichung erlaubt die Berechnung von Temperatur- und Dichteprofilen in der Schüttung, die mit experimentellen Werten der Autoren verglichen werden. In den Rechnungen werden kaum Parameter variiert, so daß nicht viele Aussagen über die bestimmenden Einflüsse gemacht werden können.

Ein deutlich umfassenderes Modell für den Abbrand einer Zigarette wurde von Summerfield et al. [51] aufgestellt. Es handelt sich um eine horizontal angeordnete Schüttung, die mit einer konstanten, erzwungenen Strömung durchströmt wird. Es wird eine zweistufige Kinetik, Pyrolyse des Tabaks und Oxidation des Kokes, vorausgesetzt, deren Kinetik aus einer thermischen Analyse von Tabak stammt. Die eindimensional formulierten Gleichungen für die Gasmasse, Masse der Rauchtröpfchen (bewegen sich mit dem Gas und nehmen kein Volumen ein), die Komponenten Tabak, Koks und Sauerstoff und zwei getrennte Energiegleichungen für die feste und die gasförmige Phase werden gelöst. Der Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit und der Sauerstoffkonzentration auf die Abbrandrate kann mit dem Modell hinreichend beschrieben werden.

Ein gutes Modell für die Ausbreitung eines Schmelzbrandes gegen die Strömungsrichtung wurde von Ohlemiller et al. [52] veröffentlicht. Es beschreibt eine senkrecht stehende Schüttung, deren oberes Ende durch Strahlung beheizt wird. Die (eindimensionale) Strömung kommt durch Auftriebskräfte zustande. Gelöst werden die Kontinuitätsgleichungen für das Gas und den Feststoff, die Impulsgleichung, eine kombinierte Energiegleichung für Gas und Feststoff und die Speciesgleichungen für das ursprüngliche Material, Koks und Sauerstoff. Beschrieben werden soll der Abbrand von Polyurethan-Schaum, wobei die folgende Kinetik zugrunde gelegt wird: Ausgangsmaterial +  $O_2 \rightarrow$  Koks + Gas und  $Koks + O_2 \rightarrow Koks^* + Gas$  (Koksbildung und Koksoxidation). Ohlemiller stellt anhand der Rechnungen fest, daß die Ausbreitung des Brandes durch den Transport von Sauerstoff kontrolliert wird. Dieses Ergebnis wird, wie erwähnt, durch viele andere Rechnungen und durch Experimente bestätigt. Ohlemiller folgert außerdem, daß der Energietransport durch Strahlung in der Schüttung nicht vernachlässigt werden kann gegenüber dem Transport durch Wärmeleitung. Über diesen Punkt herrscht heute immer noch Unklarheit, er ist noch nicht abschließend geklärt.

Eine gewisse Ähnlichkeit zu dem in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Modell (Kap. 3) hat das Modell von Kailasanath et al. [53]. Es handelt sich um eine einseitig verschlossene Schüttung (eindimensionale Betrachtung), deren offenes Ende durch einen externen Wärmefuß (Strahlung) erwärmt wird. In der Schüttung läuft nur eine Pyrolysereaktion ab (Feststoff  $\rightarrow$  Koks + Gase), daher muß der Sauerstofftransport nicht betrachtet werden.

Die entstehenden Gase entweichen aus der Schüttung, können dort aber nicht reagieren und werden nicht weiter verfolgt. Gelöst werden die Kontinuitätsgleichungen für Gas und Partikeln, die Impulsgleichung und eine kombinierte Energiegleichung für Gas und Partikeln. Die Rechnungen zeigen den Einfluß der Kinetik und der Wärmeleitfähigkeit des Materials auf die Temperaturentwicklung. Die Autoren zeigen außerdem, daß es je nach Strömungswiderstand zu einem deutlichen Ansteigen des Druckes in der Schüttung kommen kann.

Leisch et al. [43, 44] haben die Ausbreitung von Schwelbränden bei horizontal überströmten Schichten aus Getreide und Holzstaub untersucht. Bei den Experimenten wurde auch der Umschlag in die flammende Verbrennung beobachtet, das numerische Modell ist dagegen wesentlich einfacher. Es wird ein eindimensionales Modell gebildet, das keine Gasphasenreaktion enthält (nur Pyrolyse und Koksoxidation) und daher den Umschlag nicht berechnen kann. Außerdem wird die Strömung über die Schüttung vernachlässigt und stattdessen eine ruhende Atmosphäre angenommen. Diese Voraussetzungen schränken die Vergleichbarkeit zwischen Theorie und Experimenten stark ein. Die Lösung der Kontinuitätsgleichungen für das unverbrauchte Material, den Koks und die Asche sowie der Energiegleichung (für Feststoff und Gas) ergeben Werte für die Maximaltemperatur in der Schüttung und die Dicke der Reaktionszone. Die Ergebnisse sind mit den experimentell ermittelten Werten vergleichbar, was auf die in die Rechnung eingegangenen, gemessenen Größen zurückgeführt werden muß.

Dosanjh et al. [27, 54, 55] haben ein Modell für eine senkrecht stehende Schüttung entwickelt, wobei drei Arten des Abbrandes unterschieden werden können: (1) erzwungene Durchströmung von unten nach oben, Zündung unten; (2) freie Konvektion, Zündung oben; (3) erzwungene Durchströmung von unten nach oben, Zündung oben. Gelöst werden die eindimensional formulierte Kontinuitätsgleichung, eine kombinierte Energiegleichung und die Speciesgleichungen, im Fall der freien Konvektion außerdem die Impulsgleichung. Teilweise wurde nur ein Oxidationsschritt, teilweise ein zweistufiger Prozeß aus Pyrolyse (bei fester Temperatur  $T_p$ ) und Koksoxidation (unendlich schnelle Reaktion vorausgesetzt) benutzt. Die Rechnungen bestätigen den Einfluß von Wärme- und Sauerstofftransport in der Schüttung auf die Ausbreitung des Brandes. Neuere experimentelle Untersuchungen [38, 39, 45] wurden auch mit den Modellen von Dosanjh verglichen.

Aus den bisher dargestellten Modellen werden einige Gemeinsamkeiten sichtbar: Alle Rechnungen gehen von einer eindimensionalen Betrachtung aus. Das Ziel ist in der Regel die Bestimmung des Einflusses ausgewählter Größen auf die Ausbreitung eines Schwelbrandes, die oft als stationär vorausgesetzt wird. Es handelt sich nie um angeströmte Schüttungen, sondern immer um durchströmte Systeme oder den Fall der natürlichen Konvektion. Weil keine Gasphase außerhalb der Schüttung betrachtet wird und keine Gasphasenreaktionen zugelassen werden, kann kein Text Ergebnisse zur Zündung von homogenen Reaktionen nennen.

Einen ganz anderen Ansatz wählten Moallemi et al. [56]. Sie gingen von einer zylindrischen Probe in einer durchströmten Kammer aus und formulierten die Erhaltungsgleichungen für zwei Dimensionen. Die Gleichungen haben in der Schüttung und in der reinen Gasphase dieselbe Form; über den Faktor der Porosität wird unterschieden, ob die jeweilige Zelle des Rechengebiets zur Schüttung oder zur reinen Strömung gehört. Es werden die Konti-

nuitätsgleichungen für Gas und Partikeln, die Impulsgleichung, eine kombinierte Energiegleichung (Gas und Partikeln) und die Gleichung für den Mischungsbruch gelöst. In den Rechnungen wird nur eine heterogene Reaktion ( $C + O_2 \rightarrow CO_2 + \text{Asche}$ ) zugelassen. Daher werden als Ergebnisse nur die Entwicklung von Temperaturprofilen, Aschegehalten u.ä. gezeigt. Das Modell besitzt aber von der Anlage her die Kapazität, wesentlich komplexere Zusammenhänge, einschließlich der Berücksichtigung von Gasphasenreaktionen, zu berechnen. Es ist daher das umfassendste bisher veröffentlichte Modell.

## Kohlevergasung

Im Rahmen dieser Literaturübersicht sollen auch Texte aus anderen Gebieten als der Untersuchung von Schwelbränden besprochen werden. Bei der Kohlevergasung treten qualitativ ähnliche Effekte auf. Zudem gibt es Untersuchungen aus anderen Gebieten, die sich mit der Zündung von heterogenen bzw. homogenen Reaktionen befassen.

Kotowski et al. [57] haben ein Modell für die Untertagevergasung von Kohle formuliert. Es ist eindimensional und berücksichtigt die Kontinuitätsgleichung für das Gas, eine kombinierte Energiegleichung für Gas und Kohle und Speciesgleichungen für Sauerstoff und die Gesamtheit der flüchtigen Gase. Aufgrund der starken Konvektion wird die Diffusion in der Speciesgleichung vernachlässigt. Die Kohle pyrolysiert und der Sauerstoff reagiert mit den flüchtigen Gasen. Die Kinetik der Reaktionen wurde aus Angaben in der Literatur abgeleitet. Es ergeben sich Werte für die maximale Temperatur in der Schüttung und Temperatur- bzw. Sauerstoffprofile, die qualitativ mit Laboruntersuchungen übereinstimmen. Ein quantitativer Vergleich ist aufgrund der unzureichend modellierten Kinetik nicht möglich.

Ein bezüglich der Kinetik umfangreicheres Modell wird von Winslow [58] vorgestellt. Er berücksichtigt 8 Species in der Gasphase und 5 Species in der festen Phase. Es werden eine Pyrolysereaktion und fünf weitere heterogene bzw. homogene Reaktionen in der Schüttung zugelassen. Die eindimensional formulierten Erhaltungsgleichungen (Kontinuitätsgleichung für das Gas, Impulsgleichung, zwei Energiegleichungen, Speciesgleichungen) werden gelöst, um die Ausbreitung der Reaktionsfront sowie Temperatur- und Gasprofile zu berechnen. Es ergeben sich zufriedenstellende Übereinstimmungen mit Laborexperimenten.

Das besprochene Modell von Winslow ist ähnlich zu dem Modell von Thorsness et al. [59]. Auch hier wird versucht, mit einer eindimensionalen Formulierung und unter Berücksichtigung einer detaillierten Kinetik (einschließlich Trocknung und Pyrolyse; 13 Species) die *in situ* Kohlevergasung zu beschreiben. (Die Autoren versuchen zudem, das Modell durch die Berechnung einfacher Fälle, für die es analytische Lösungen gibt, zu verifizieren. Diese Vorgehensweise wird in der vorliegenden Arbeit übernommen, siehe Anhang, Kapitel 8.2).

Beispiele für neuere Versuche der Modellierung sind die Texte von Hobbs et al. [60, 61]. Es handelt sich um eindimensionale Modelle, deren Schwerpunkt auf der kinetischen Beschreibung der Kohlevergasung liegt. Unter Berücksichtigung experimentell ermittelter Werte wird versucht, die Rechnungen anzupassen und mit Messungen zu vergleichen. Ein zweidimensionales Modell wurde von Embacher [62] aufgestellt und von Raupenstrauch

[63] ausgebaut. Die Rechnungen erfolgten zwar mit einem sehr groben Gitter, aber es wurden viele physikalische und chemische Details modelliert. Die bisher veröffentlichten Ergebnisse dienen hauptsächlich der Verifikation des Modells, quantitative Vorhersagen des Verhaltens einer Anlage stehen noch aus.

Aus dem bisher Gesagten werden Gemeinsamkeiten der Modelle deutlich: Viele Modelle sind eindimensional, es handelt sich immer um eine durchströmte Schüttung. Eine reine Gasphase, wie sie die Grenzschicht bei einer angeströmten Schüttung darstellt, wird in keinem Text behandelt. Die Unterschiede zu der Modellierung von Schwelbränden liegen in Details wie der Größenordnung der Strömungsgeschwindigkeit, des Partikelradius und des Druckniveaus. Alle diese Größen sind im Fall der Kohlevergasung oft wesentlich größer als bei der schwelenden Verbrennung. Viele der Ansätze zur Berechnung der Kohlevergasung sind gekennzeichnet durch eine sehr umfangreiche Modellierung, insbesondere hinsichtlich der Kinetik, und die Verwendung zahlreicher Daten aus Experimenten, um eine Anpassung an reale Verfahren und Anlagen zu ermöglichen. Ziel der Rechnungen sind die Profile für Temperaturen und Konzentrationen in der Schüttung und damit sowohl die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Reaktionsfront als auch die Gaszusammensetzung am Austritt.

Das Gebiet der Kohlevergasung ist sehr umfangreich und kann hier nur gestreift werden. Einen Überblick über die ablaufenden Prozesse findet man beispielsweise bei Annamalai [8], numerische Modelle werden in anderen Quellen [64-67] ausführlicher besprochen als hier.

## Zünd- und Löschphänomene

Es ist zu sehen, daß bei den bisher besprochenen Gebieten die Modellierung heterogener Reaktionen zwischen Feststoff und Gas bzw. homogener Reaktionen, die in der Gasphase im Inneren einer Schüttung ablaufen, im Vordergrund stehen. Es gibt aber auch Studien, bei denen die Zündung von heterogenen bzw. homogenen Reaktionen betrachtet wird und die Betonung auf den Gasphasenprozessen liegt.

Gururajan et al. [5] betrachten den Abbrand eines Kohlepartikels unter Berücksichtigung heterogener und homogener Reaktionen. Das Partikel befindet sich in einer ruhenden Atmosphäre, und es wird ein stationärer Zustand betrachtet. Durch Pyrolyse werden flüchtige Gase frei, gleichzeitig läuft an der Oberfläche eine Reaktion mit Sauerstoff ab ( $C + O_2 \rightarrow CO_2$ ). Die flüchtigen Gase oxidieren in der Gasphase, als Reaktionsprodukte entstehen  $CO_2$  und  $H_2O$  (Globalkinetik). Die stationären Erhaltungsgleichungen für Energie und Species werden gelöst, als Ergebnis wird im wesentlichen die Massenabbrandrate als Funktion der Umgebungstemperatur aufgetragen. Dabei ist zu sehen, daß es zu zwei Zündvorgängen kommen kann: eine Zündung bei niedrigen Temperaturen aufgrund der heterogenen Reaktion und eine Zündung bei hohen Temperaturen aufgrund der homogenen Reaktion. Man kann daraus nicht ableiten, daß ein Einzelpartikel nur durch einen heterogenen bzw. nur durch einen homogenen Mechanismus zündet.

Eine ganz ähnliche Untersuchung wurde von Zhang [6] veröffentlicht. Dabei geht es ebenfalls um ein Einzelpartikel in einer ruhenden Umgebung. Das Partikel wird mit einer

konstanten Leistung geheizt, dadurch können eine heterogene Reaktion und eine homogene Gasphasenreaktion ablaufen. Die stationären Lösungen (im wesentlichen die Partikeltemperatur über der zugeführten Leistung) zeigen ein S-förmiges Verhalten mit Mehrfachlösungen, wie es für Zünd- und Löschvorgänge charakteristisch ist. Auch bei dieser Untersuchung können unter gewissen Bedingungen (abhängig u.a. vom Partikeldurchmesser) zwei Zündvorgänge aufgrund des heterogenen und des homogenen Mechanismus beobachtet werden.

Weitere Ergebnisse zum Zünd- und Abbrandverhalten eines Einzelpartikels nennen zum Beispiel die Quellen [68-71], einen größeren Überblick findet man bei Annamalai et al. [8]. Annamalai nennt darüberhinaus auch Texte, die sich mit reagierenden Oberflächen beschäftigen.

Eine Staupunktströmung, die auf eine geschlossene Oberfläche trifft, wurde mehrfach behandelt. Vlachos et al. [72] lassen nur homogene Reaktionen zu, die Oberfläche ist inert. Eine katalytische Oberfläche mit heterogenen Reaktionen und homogenen Reaktionen in der Gasphase wird bei Williams et al. [73] experimentell untersucht, die dazugehörige numerische Untersuchung liefern Song et al. [74]. Song vergleicht für einen solchen Fall zudem die Zündkriterien von Frank-Kamenetskii und van't Hoff [75].

Henriksen et al. [7] haben die Zündung von heterogenen und homogenen Reaktionen beim Abbrand einer Kohlenstoffoberfläche in einer Staupunktströmung numerisch untersucht. Es ergeben sich S-förmige Zünd- und Löscharakteristiken mit nicht-eindeutigen Lösungen, wobei die kinetischen Daten der Reaktionen großen Einfluß auf das qualitative Aussehen der stationären Lösungen haben. Die vorliegende Arbeit erweitert dieses Modell, indem es statt der geschlossenen Oberfläche eine Schüttung an die Staupunktströmung anschließt.

Einige Modelle beinhalten die Zündung der homogenen Reaktion durch Strahlungsabsorption in der Gasphase. Amos et al. [76] betrachten eine verdunstende Oberfläche in einer Staupunktströmung. Die entstehenden Gase absorbieren Strahlung und können zünden, wobei diese Zündung allerdings nur für hohe Strahlungsintensitäten bzw. einen großen Absorptionsgrad des Gases eingetreten ist. Dieses und andere Ergebnisse werden qualitativ mit den experimentellen Beobachtungen anderer Autoren verglichen.

Ein ähnliches System wird von Di Blasi et al. [77] untersucht. Mit einem eindimensionalen Modell wird der Fall eines Feststoffs, der bestrahlt wird, betrachtet. Die Strahlung wird im Feststoff und im Gas absorbiert. Während in der Gasphase der Energie- und Massentransport berücksichtigt werden, wird für den Feststoff nur die Energiegleichung gelöst. Eine Pyrolysereaktion im Feststoff, der Abbau des Feststoffs und eine Gasphasenreaktion werden zugelassen. Die Gasphasenreaktion zündet aufgrund der Strahlungsabsorption leichter als wenn die Zündung nur durch Wärmeleitung von der heißen Oberfläche hervorgerufen werden könnte. Für einen quantitativen Vergleich mit Experimenten ist aber auch dieses Modell zu einfach.

Die Zündung von Kohle durch die hohe Strahlungsintensität eines Lasers ist das Thema der Arbeiten von Phuoc et al. [78, 79]. Die Strahlung wird vom Feststoff und vom Gas absorbiert, es laufen eine Pyrolysereaktion, die Oxidation der Oberfläche und eine Gasphasenreaktion ab. Es wird gezeigt, daß abhängig von der Kinetik der Reaktionen und

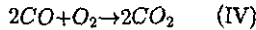
der Strahlungsintensität zwei aufeinanderfolgende Zündvorgänge durch den heterogenen und den homogenen Mechanismus auftreten können. Es kann aber auch vorkommen, daß nur die Gasphasenzündung existiert.

Bei den vorgestellten Texten zur Zündung von heterogenen und homogenen Reaktionen liegt der Schwerpunkt im Gegensatz zu den Untersuchungen zur schwelenden Verbrennung und der Kohlevergasung auf der Modellierung der Strömungs- und Reaktionsvorgänge in der Gasphase. Die feste Phase wird maximal durch eine Energiegleichung beschrieben. Eine Kopplung eines Modells für eine Schüttung mit einem Modell für eine Strömung existiert in der Form, wie sie im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit vorgestellt wird, bisher nicht.



Die Oxidationsreaktionen (I) und (II) sind exotherm, wohingegen die Vergasungsreaktion (III) eine endotherme Reaktion ist. Je nach Temperaturbereich läuft der Abbrand von Kohlenstoff bevorzugt über unterschiedliche Wege ab. So ist Reaktion (I) nur bei Temperaturen  $<1000\text{K}$  von Bedeutung, bei Temperaturen  $>1000\text{K}$  hingegen ist sie gegenüber Reaktion (II) vernachlässigbar. Die Boudouard-Reaktion (III) läuft erst bei hohen Temperaturen (ca.  $>1800\text{K}$ ) und wenn kein Sauerstoff mehr vorhanden ist in nennenswertem Maß ab.

Die Reaktionsprodukte  $CO$  und  $CO_2$  werden aus der Schüttung heraustransportiert. In der Anströmung kann sich eine Diffusionsflamme ausbilden, welche durch folgende homogene Gasphasenreaktion beschrieben wird:



Das hierbei entstehende  $CO_2$  wird teilweise Richtung Schüttung transportiert und kann dort mit dem Kohlenstoff wieder zu  $CO$  reagieren.

Im allgemeinen können homogene Reaktionen im Inneren der Schüttung und in der Anströmung ablaufen. Hier wird jedoch nur der Fall der Gasphasenreaktion in der Anströmung betrachtet; im Inneren der Schüttung werden nur die heterogenen Reaktionen zugelassen.

Die heterogenen Reaktionen (I-III) werden als Reaktionen erster Ordnung beschrieben

$$r_{I/II} = k_{I/II} \cdot \frac{\rho_g Y_{O_2}}{M_{O_2}}, \quad (3.1)$$

$$r_{III} = k_{III} \cdot \frac{\rho_g Y_{CO}}{M_{CO_2}}, \quad (3.2)$$

wobei der Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizient  $k_j$  durch den Arrheniusansatz gegeben ist:

$$k_j = k_{0,j} \exp\left(-\frac{E_j}{RT}\right), \quad j = \text{I-III} \quad (3.3)$$

Hier sind  $k_{0,j}$  der Frequenzfaktor und  $E_j$  die Aktivierungsenergie der Reaktion  $j$ .

Die homogene Reaktion (IV), welche die Oxidation von  $CO$  zu  $CO_2$  beschreibt, läuft im allgemeinen sehr langsam ab, wird aber bereits durch kleine Mengen Wasserdampf stark beschleunigt [82, 83].

Im Rahmen dieser Arbeit soll die Oxidation als Bruttoreaktion ohne Rückwärtsreaktion unter Berücksichtigung der katalytischen Wirkung von Wasserdampf beschrieben werden. (Der Wasserdampf selbst wird als inerte Species betrachtet.) Für diesen Fall geben Howard et al. [82] folgenden Ansatz für die Reaktionsrate an:

$$r_{IV} = k_{0,IV} \left(\frac{\rho_g Y_{O_2}}{M_{O_2}}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\rho_g Y_{CO}}{M_{CO}}\right) \left(\frac{\rho_g Y_{H_2O}}{M_{H_2O}}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{E_{IV}}{RT}\right) \quad (3.4)$$

Reaktion	$k_{0,j}$	$E_j$
(I) $C + O_2 \rightarrow CO_2$	$7,6 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$	$146,1 \cdot 10^6 \frac{J}{kmol}$
(II) $2C + O_2 \rightarrow 2CO$	$1,9 \cdot 10^7 \frac{m}{s}$	$198,0 \cdot 10^6 \frac{J}{kmol}$
(III) $C + CO_2 \rightarrow 2CO$	$1,291 \cdot 10^5 \frac{m}{s}$	$189,3 \cdot 10^6 \frac{J}{kmol}$
(IV) $2CO + O_2 \rightarrow 2CO_2$	$1,3 \cdot 10^{11} \frac{m^3}{kmol \cdot s}$	$125,5 \cdot 10^6 \frac{J}{kmol}$

Tabelle 3.1: Reaktionskinetische Konstanten  
(Werte aus [80, 81])

Es wird vorausgesetzt, daß der Wasserdampf in so geringen Mengen vorhanden ist, daß andere mögliche homogene und heterogene Reaktionen mit  $H_2O$  (z.B. die häufig in Modellen zu findende Reaktion  $C + H_2O \rightarrow CO + H_2$ ) vernachlässigt werden können.

Die Werte für die Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien der vier Reaktionen müssen der Literatur entnommen werden. Dabei ist festzustellen, daß sich vor allem die Angaben für den Frequenzfaktor der Boudouard-Reaktion (III) bei verschiedenen Autoren um einige Größenordnungen unterscheiden. In der vorliegenden Arbeit wird auf die Studien von Henriksen [80, 81] zurückgegriffen, da er den Einfluß der kinetischen Konstanten überprüft und schließlich eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten für den Abbrand einer angeströmten Kohlenstoffoberfläche von Matsui et al. [84, 85] erreicht hat. Durch die Benutzung derselben kinetischen Werte ist somit eine Vergleichbarkeit mit früheren numerischen und experimentellen Ergebnissen gegeben. Die reaktionskinetischen Konstanten sind in der Tabelle (3.1) zusammengestellt.

In Experimenten zum Kohlenstoffabbrand sind entweder ein konstanter Wärmestrom zur Oberfläche vorgegeben, oder die Oberflächentemperatur wird durch eine Regelung dieses externen Wärmestroms konstant gehalten [84-87]. Daher wird im theoretischen Modell dieser Arbeit ein externer Wärmestrom  $\dot{q}$  zur Oberfläche der Schüttung eingeführt. Weiterhin wird ein Wärmeverlust von der Oberfläche durch Strahlung an die kalte Umgebung berücksichtigt, wobei sowohl der Kohlenstoff als auch die Umgebung als schwarze Körper angesehen werden.

### 3.1 Staupunktströmung

Das Strömungsfeld der Anströmung wird als laminare, rotationssymmetrische Staupunktströmung angenommen (Abb. 3.2). Die reibungsfreie Außenströmung wird durch die Potentiallösung

$$u_e = ax$$

$$v_e = -2ay$$

gegeben [88]. Somit ist das Strömungsfeld durch die Angabe des Staupunktgradienten  $a$  vollständig beschrieben.

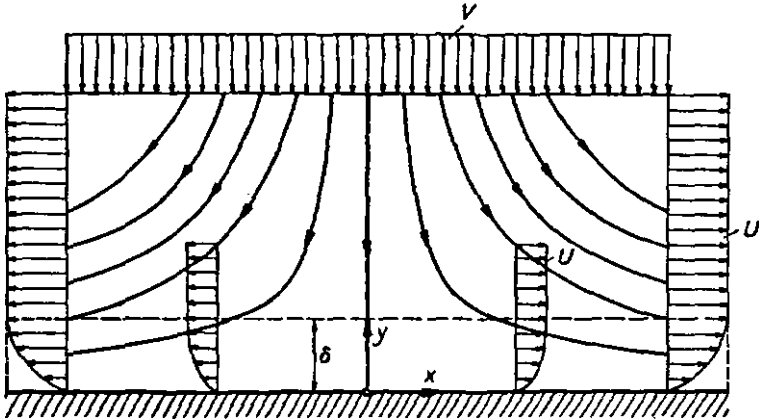


Abbildung 3.2: Rotationssymmetrische Staupunktströmung  
(Bild aus Schlichting [88], S.77)

Innerhalb der Grenzschicht vor der Oberfläche der Schüttung kann eine Reaktion ablaufen. Die Erhaltungsgleichungen für die Gesamtmasse, die Masse der einzelnen Komponenten, den Impuls und die Energie werden für laminare Strömungen chemisch reagierender Gase von verschiedenen Autoren genannt [14, 89, 90]. In diesen Gleichungen können bei genügend großer Reynoldszahl die üblichen Grenzschichtvereinfachungen eingeführt werden, wie dies zum Beispiel bei Schlichting [88], Kuo [90] und Dorrance [91] gemacht wurde. So ergeben sich die Grenzschichtgleichungen für den zweidimensionalen, rotationssymmetrischen Fall [90, 92, 93]:

Kontinuität:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{x} \frac{\partial}{\partial x} (\rho x u) + \frac{\partial}{\partial y} (\rho v) = 0 \quad (3.5)$$

Impuls:

$$\rho \left( \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} \right) = \rho_e u_e \frac{du_e}{dx} + \frac{\partial}{\partial y} \left( \mu \frac{\partial u}{\partial y} \right) \quad (3.6)$$

Energie:

$$\begin{aligned} \rho c_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial x} + v \frac{\partial T}{\partial y} \right) &= -u \rho_e u_e \frac{du_e}{dx} + \frac{\partial}{\partial y} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial y} \right) \\ &+ \sum_{i=1}^N \rho D_i \left( \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) \left( \frac{\partial h_i}{\partial y} \right) + \mu \left( \frac{\partial u}{\partial y} \right)^2 - \sum_{i=1}^N h_i w_i \end{aligned} \quad (3.7)$$

In dieser Formulierung wird der Dufour-Effekt vernachlässigt und das Ficksche Gesetz für den Diffusionsstrom vorausgesetzt [89].  $w_i$  ist die Produktionsrate der Species  $i$  in der homogenen Reaktion (IV):  $w_i = M_i \nu_{i,IV} r_{IV}$

Species:

$$\rho \left( \frac{\partial Y_i}{\partial t} + u \frac{\partial Y_i}{\partial x} + v \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) = \frac{\partial}{\partial y} \left( \rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) + w_i \quad (3.8)$$

Hier wird der Diffusionsmassenstrom ebenfalls durch das Ficksche Gesetz wiedergegeben. Um die Lösung der Differentialgleichungen zu vereinfachen, werden sie auf die Grenzschichtkoordinate [94]

$$\eta \equiv \sqrt{\frac{a}{(\rho\mu)_r}} \int_0^y \rho dy \quad (3.9)$$

transformiert. Außerdem beschränkt sich die vorliegende Arbeit auf den Staupunktbereich ( $x=0$ ). Somit ergeben sich die folgenden Bilanzgleichungen:

Kontinuität:

$$\frac{1}{2\rho} \frac{\partial \rho}{\partial \tau} + f_\eta + \frac{\partial V}{\partial \eta} = 0 \quad (3.10)$$

Impuls:

$$\frac{\partial f_\eta}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial f_\eta}{\partial \eta} = \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \ell \frac{\partial f_\eta}{\partial \eta} \right) + \frac{\rho_e}{\rho} - f_\eta^2 \quad (3.11)$$

Energie:

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial \theta}{\partial \eta} = \frac{1}{c_p} \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \frac{\ell}{Pr} c_p \frac{\partial \theta}{\partial \eta} \right) + \frac{1}{c_p T_r} \sum_i \frac{\ell Le_i}{Pr} \frac{\partial Y_i}{\partial \eta} \frac{\partial h_i}{\partial \eta} - \sum_i H_i W_i \quad (3.12)$$

Species:

$$\frac{\partial Y_i}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial Y_i}{\partial \eta} = \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \frac{\ell}{Pr} Le_i \frac{\partial Y_i}{\partial \eta} \right) + W_i \quad (3.13)$$

Hierbei wurden die folgenden dimensionlosen Größen eingeführt:

Zeit:	$\tau = t \cdot a$
Geschwindigkeit in tangentialer Richtung:	$f_\eta = u/u_e$
Geschwindigkeit in normaler Richtung:	$V = \rho v / (2\sqrt{a(\rho\mu)_r})$
Temperatur:	$\theta = T/T_r$
Enthalpie:	$H_i = h_i / (c_p T_r)$
Produktionsrate der homogenen Reaktion:	$W_i = w_i / (a\rho)$
Chapman-Rubesin-Parameter:	$\ell = \rho\mu / (\rho\mu)_r$
Prandtl-Zahl:	$Pr = \mu c_p / \lambda$
Lewis-Zahl:	$Le_i = \rho D_i c_p / \lambda$

Um die Lösung des Problems zu erleichtern, werden zusätzliche vereinfachende Annahmen getroffen, welche von Henriksen [81] eingeführt wurden. Henriksen hat die unter diesen Annahmen erzielten Ergebnisse den Berechnungen mit den nicht-vereinfachten Erhaltungsgleichungen bzw. experimentell ermittelten Werten gegenübergestellt. Es ergab sich eine sehr gute Übereinstimmung, so daß die Benutzung der folgenden Annahmen keine Einschränkung der Gültigkeit der Ergebnisse darstellt:

$$\begin{aligned}
Le_i &= Le = 1 \\
Pr &= 0,7 \\
c_{p_i} &= c_p = const. \\
\frac{\rho_e}{\rho} &= \frac{\rho_e}{\rho_w} \quad (\text{in der Impulsgleichung}) \\
\ell &= \frac{(\rho\mu)_w}{(\rho\mu)_r} \varphi(Y_{O_2,e}) \quad \text{mit } \varphi(Y_{O_2,e}) = 0,28(2 + Y_{O_2,e})
\end{aligned}$$

Unter Berücksichtigung dieser Annahmen ergaben sich die Erhaltungsgleichungen, wie sie in der vorliegenden Arbeit benutzt werden:

Kontinuität:

$$\frac{1}{2\rho} \frac{\partial \rho}{\partial \tau} + f_\eta + \frac{\partial V}{\partial \eta} = 0 \quad (3.14)$$

Impuls:

$$\frac{\partial f_\eta}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial f_\eta}{\partial \eta} = \ell \frac{\partial^2 f_\eta}{\partial \eta^2} + \frac{\rho_e}{\rho_w} - f_\eta^2 \quad (3.15)$$

Energie:

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial \theta}{\partial \eta} = \frac{\ell}{Pr} \frac{\partial^2 \theta}{\partial \eta^2} - \sum_i H_i W_i \quad (3.16)$$

Species:

$$\frac{\partial Y_i}{\partial \tau} + 2V \frac{\partial Y_i}{\partial \eta} = \frac{\ell Le}{Pr} \frac{\partial^2 Y_i}{\partial \eta^2} + W_i \quad (3.17)$$

mit  $i = O_2, CO, CO_2, H_2O, N_2$ . Weiterhin soll die thermische Zustandsgleichung für ideale Gase gültig sein. Der Druck sei dabei konstant.

$$p = \frac{\rho RT}{M} = const. \quad (3.18)$$

Die so erhaltenen Differentialgleichungen für die Grenzschicht der Staupunktströmung sind weitgehend identisch mit den in [80, 81] benutzten Gleichungen. In der Formulierung (Gl. (3.14)-(3.17)) sind lediglich zusätzlich die instationären Terme enthalten, da das in dieser Arbeit verwendete numerische Verfahren (siehe Kap. 3.4) auf der instationären Formulierung der Erhaltungsgleichungen aufbaut.

Die Randbedingungen am Grenzschichtrand sowie an der Oberfläche der Schüttung werden im Kapitel 3.3 besprochen; zunächst werden in Kapitel 3.2 die Erhaltungsgleichungen für das Teilsystem der Schüttung diskutiert.

Um das Modell und das numerische Verfahren für die Anströmung zu testen, wurden Rechnungen für den Abbrand einer geschlossenen Kohlenstoffoberfläche durchgeführt. Die Ergebnisse wurden mit Werten aus [7, 80, 81] verglichen und sind im Anhang (Kap. 8.1) dargestellt.

## 3.2 Schüttung

Die Partikeln der Schüttung werden als Kugeln gleichen Durchmessers betrachtet. Auch für das „Teilsystem Schüttung“ erfolgt, analog zur Anströmung, eine Beschränkung auf

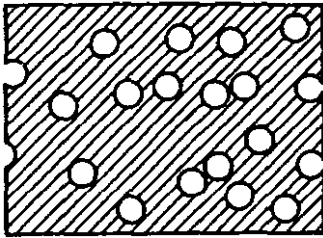
die Staupunktlinie ( $x=0$ ). Eine solche eindimensionale Formulierung wird in der Literatur meistens bei der Modellierung von Schwelbränden gewählt. Dadurch werden einerseits Ungenauigkeiten (z.B. die unzureichende Wiedergabe des Einflusses von Auftriebskräften auf die Ausbreitung von Schwelbränden) in Kauf genommen. Andererseits können aber die wesentlichen Aspekte auch an eindimensionalen Modellen studiert werden, und es können Erfahrungen für eine spätere mehrdimensionale Modellierung gesammelt werden. Da in dieser Arbeit die Betonung nicht auf dem Vergleich der numerischen Ergebnisse mit experimentellen Werten liegt, sondern auf der theoretischen Analyse der wesentlichen physikalischen Einflüsse, ist die Beschränkung auf die Staupunktlinie ein hinreichender Ausgangspunkt.

Zur Herleitung von Erhaltungsgleichungen für die Beschreibung einer Strömung in einer Schüttung (wobei im allgemeinen auch eine Bewegung der Partikeln möglich sein sollte) sind verschiedene Wege vorgeschlagen worden. Dabei handelt es sich um (1) statistische Modelle, (2) die Kontinuums-Mechanik-Modelle, (3) eine formale Mittelung und (4) die getrennte Betrachtung der zwei Phasen. Hier sollen die unterschiedlichen Methoden nur erwähnt werden, einen ausführlichen Überblick geben die Texte von Kuo [90] und Gokhale et al. [95].

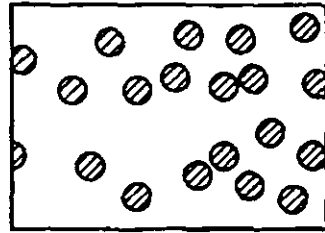
Die statistische Methode betrachtet die Zufallsbewegung der Einzelphasen und die resultierenden Transportgrößen, die sich von denen eines homogenen Fluids unterscheiden. Diese Methode ist bisher noch nicht so verallgemeinert worden, daß sie auch für reagierende Strömungen angewendet werden kann [95]. Die Kontinuums-Methode beinhaltet einige Nachteile, wie z.B. daß die Gleichungen für die Gas- bzw. die Partikelphase aus einer (gemeinsamen) Gleichung für die Mischung abgeleitet werden [90]. Es werden daher meistens die oben genannten Methoden (3) oder (4) benutzt. Bei dem Weg der formalen Mittelung werden neue, gemittelte Feldgrößen durch die Integration über einen gewissen Bereich der Zwei-Phasen-Strömung definiert. Dieser Bereich muß groß genug sein, um viele Partikeln zu beinhalten, aber er muß klein gegenüber den Gesamtmaßen des Systems sein. Eine Beschreibung der Vorgehensweise findet man in [90, 95, 96], zur Anwendung kommt diese Methode in [56]. Die gängigste Vorgehensweise ist die Betrachtung beider Phasen, indem für jede Phase ein getrenntes Kontrollvolumen betrachtet wird, die zusammengesetzt ein Kontrollvolumen der Mischung beider Phasen darstellen (Abb. 3.3).

So erhält man die Erhaltungsgleichungen getrennt für die beiden Phasen, die über die Austauschterme für Wärme, Stoff und Impuls gekoppelt sind. Die Beschreibungen bei Kuo [90] und Ohlemiller [1] basieren auf dieser Vorstellung und dienen als Ausgangspunkt für die hier vorgestellte mathematische Formulierung.

Der Vergleich der Formulierung des in dieser Arbeit verwendeten Modells mit in der Literatur verwendeten Modellen fällt aus verschiedenen Gründen schwer. Relativ häufig findet man Modelle für die industrielle Vergasung von Kohle in durchströmten Schüttungen (siehe Literaturrecherche in [64, 65]). Bei der Kohlevergasung liegen die Strömungsgeschwindigkeiten der Gasphase in einer Größenordnung von ca. 1 m/s während hier Werte von kleiner als 10 cm/s zu erwarten sind. Zweitens wird in der vorliegenden Arbeit von Partikeln mit einem Durchmesser von 2 mm ausgegangen, in Analogie zu den Experimenten von Braunschädel [18], bei industriellen Prozessen ist der Durchmesser oft größer. Drittens arbeiten die meisten Vergasungsmodelle mit hohen Drücken, der zu simulierende Schwel-



Kontrollvolumen für die Gasphase



Kontrollvolumen für die Partikelphase

Abbildung 3.3: Kontrollvolumen für Gas- und Partikelphase  
(Bild aus Kuo [90], S.603)

brand spielt sich aber bei atmosphärischem Druck ab. Zu diesen Unterschieden kommen noch problemspezifische Vereinfachungen, die beträchtliche Feuchtigkeit der Kohle in industriellen Prozessen und weitere Aspekte hinzu, so daß die Vergleichbarkeit fast nicht mehr gegeben ist.

Bei der Simulation von Schwelbränden wird in der Literatur in der Regel eine sehr vereinfachte Darstellung des Feststoffs benutzt. So wird z.B. oft nur die Energiegleichung für die feste Phase aufgestellt und gelöst. Der einzige Text, in dem wie in dieser Arbeit eine Kopplung der Strömung in einer Schüttung und der an die Schüttung angrenzenden Gasphase vorgenommen wird, ist die Arbeit von Moallemi [56]. Weil diese Kopplung relativ komplex und das daraus entstehende Modell sehr aufwendig zu lösen ist, nimmt Moallemi einige Vereinfachungen vor, wodurch die Vergleichbarkeit mit der vorliegenden Arbeit eingeschränkt wird.

Im folgenden werden zunächst umfassende Differentialgleichungen für die beiden Phasen in der Schüttung genannt. Anschließend werden einige Vereinfachungen besprochen und die Erhaltungsgleichungen genannt, die als Ausgangspunkt für die numerische Simulation dienen.

Kontinuität (Gas):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi \rho_g) + \frac{\partial}{\partial y}(\phi \rho_g v_g) = \sum_{j, g \in s} \sum_{i, g} w_{ij} \quad (3.19)$$

Der Faktor  $\phi$  bezeichnet die Porosität der Schüttung, das heißt, das Volumen des von dem Gas eingenommenen Raumes  $V_g$  dividiert durch das Gesamtvolumen des Kontrollvolumens  $V$ :  $\phi = V_g/V$ . Entspricht eine dünne, herausgeschnittene Schicht dem statistischen Durchschnitt der Schüttung, so ist die Porosität  $\phi$  auch gegeben durch die Summe der freien Querschnitte  $A_g$  dividiert durch den Gesamtquerschnitt  $A$ :  $\phi = A_g/A$  [97].

Die Produktionsraten  $w_{ij}$  werden über alle Reaktionen  $j$  und alle Gaskomponenten  $i$

aufsummiert. Gebildet wird die Reaktionsrate aus

$$w_{ij} = \frac{3(1-\phi)}{r_p} M_i \nu_{ij} r_j \quad (3.20)$$

mit den Reaktionsraten  $r_j$ , die bereits am Anfang von Kapitel 3 eingeführt wurden. Der Vorfaktor  $3(1-\phi)/r_p$  ergibt sich durch die Umrechnung der an der Reaktionsoberfläche auftretenden Reaktionen auf das betrachtete Kontrollvolumen.

Kontinuität (Partikeln):

$$\frac{\partial}{\partial t} [(1-\phi)\rho_p] + \frac{\partial}{\partial y} [(1-\phi)\rho_p v_p] = \sum_{j, \text{ges}} \sum_{i, p} w_{ij} \quad (3.21)$$

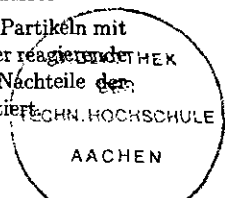
Wenn die Temperatur- und Konzentrationsgradienten in den Partikeln klein sind, brauchen sie nicht berücksichtigt zu werden, und es müssen keine Gleichungen für die Einzelpartikeln betrachtet werden. Diese Voraussetzung ist hier gegeben, da die Partikeln klein sind und die Prozesse langsam ablaufen, so daß sich in den Partikeln ein Ausgleich einstellen kann. Auf die Vorgänge im Einzelpartikel wird daher nicht näher eingegangen.

Der in der Gleichung auftretende Quellterm muß über alle Reaktionen  $j$  und alle Partikelkomponenten  $i$  summiert werden. Er entspricht dem negativen Quellterm aus der Kontinuitätsgleichung der Gasphase.

Besitzen die Partikeln eine innere Porosität  $\phi_i$ , muß  $\rho_p$  in der Gleichung durch  $(1-\phi_i)\rho_s$  ersetzt werden, wobei  $\rho_s$  die tatsächliche Dichte des (nicht porösen) Feststoffs darstellt. Konsequenterweise müßte im Fall einer inneren Porosität auch das Gas in den Partikeln in den Erhaltungsgleichungen berücksichtigt werden, wie dies in [1] gemacht worden ist. Dies soll hier vernachlässigt werden.

In der Kontinuitätsgleichung tritt eine Partikelgeschwindigkeit  $v_p$  auf, obwohl von einer ruhenden Schüttung (im Gegensatz zur Wirbelschicht) ausgegangen wird. Diese Geschwindigkeit entsteht durch den Abbrand der Partikeln. Wenn die Partikeln abbrennen, sie aber nicht den Kontakt untereinander verlieren sollen, ist dies nur möglich durch eine Bewegung der Partikeln. Bei der Beschreibung des Abbrandes können zwei Grenzfälle unterschieden werden: (1) Die Dichte der Partikeln bleibt konstant, nur der Radius wird kleiner. In diesem Fall wäre die Geschwindigkeit  $v_p$  an der Oberfläche der Schüttung gleich Null und würde zum anderen Ende der Schüttung anwachsen. Den größten Wert würde sie am „kalten“ Ende der Schüttung annehmen, wo Partikeln nachgeführt werden müssen, wenn die Schüttungslänge konstant bleiben soll. (2) Wenn der Radius konstant bleibt, aber die Dichte abnimmt (weil die Partikeln hohl ausbrennen), bewegen sich alle Partikeln mit derselben Geschwindigkeit, die die Abbrandgeschwindigkeit der Schüttung darstellt.

Zusätzlich zu diesen Möglichkeiten besteht z.B. noch die Vorstellung, daß die Partikeln mit einer Ascheschicht umgeben sind, so daß sich die äußere Form nicht ändert, der reaktive Kern aber kleiner wird (siehe auch Diskussion in [8, 98]). Die Vor- und Nachteile der einzelnen Modellierungen werden im weiteren Verlauf dieses Kapitels diskutiert.



Impuls (Gas):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi\rho_g v_g) + \frac{\partial}{\partial y}(\phi\rho_g v_g^2) = -\phi\frac{\partial p}{\partial y} - c_1\mu v_{rel} - c_2\rho_g v_{rel}|v_{rel}| \quad (3.22)$$

Der Strömungswiderstand wird mit Hilfe des Ansatzes von Ergun [99] berechnet, der diese empirische Korrelation für nicht reagierende Strömungen durch Schüttungen formulierte. Diese Gleichung ist gültig für laminare und turbulente Strömungen, sowohl der Reibungswiderstand als auch der Druckwiderstand (Formwiderstand) werden berücksichtigt. Die Koeffizienten  $c_1$  und  $c_2$  hängen von der Schüttungsporosität und der Partikelgröße ab:

$$c_1 = 150 \left[ \frac{1-\phi}{2\phi r_p} \right]^2 \quad c_2 = 1,75 \frac{(1-\phi)}{2\phi r_p} \quad (3.23)$$

Die Geschwindigkeit  $v_{rel}$  entspricht der relativen Bewegung zwischen Gas und Partikeln, die zu dem Widerstand führt:

$$v_{rel} = v_g - v_p \quad (3.24)$$

Weitere Diskussionen bzw. die Anwendung der Beziehung von Ergun findet man in [1, 89, 93, 100-102].

Die genannte Formulierung der Impulsgleichung berücksichtigt keine Auftriebskräfte, ein entsprechender Term ( $\phi\rho_g g$ ) müßte auf der rechten Seite der Gleichung ergänzt werden. Der Impuls durch die beim Abbrand entstehenden Gase ( $v_p \sum w_{ij}$ ) wird in der Gl. (3.22) vernachlässigt.

Eine Impulsgleichung für die Partikelphase muß nicht aufgestellt werden, da die Geschwindigkeit der Partikeln über die Kontinuitätsgleichung (bzw. je nach Grenzfall über globale Bilanzen) berechnet werden kann. Somit bräuchte die Impulsgleichung nur Aufschluß über die Kontaktkräfte zwischen den Partikeln, was hier jedoch nicht von Interesse ist.

Energie (Gas):

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\phi\rho_g \bar{c}_{p,g} T_g) + \frac{\partial}{\partial y}(\phi\rho_g v_g \bar{c}_{p,g} T_g) &= \frac{\partial}{\partial y} \left( \phi\lambda_g \frac{\partial T_g}{\partial y} \right) - \frac{3(1-\phi)}{r_p} \alpha (T_g - T_p) \\ + \frac{\partial}{\partial y} \left[ \phi\rho_g T_g \sum_{i,g} \left( \bar{c}_{p,g,i} D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) \right] &- \sum_{i,g} h_{i,0} \sum_{j,hom} w_{ij} + \sum_{i,g} (\bar{c}_{p,g,i} T) \sum_{j,het} w_{ij} \end{aligned} \quad (3.25)$$

Die Terme auf der rechten Seite stehen für die Wärmeleitung, den Wärmeaustausch mit der festen Phase (Konvektion und Strahlung), einen Enthalpiestrom durch die Diffusion von Komponenten und die Reaktionswärme. Diese Form der Energiegleichung erhält man aus einer Enthalpiebilanz, wenn für die spezifische Enthalpie des Gases der Ausdruck

$$h_g = \sum_{i,g} Y_i h_i = \sum_{i,g} Y_i \left[ h_{i,0} + \int_0^{T_g} c_{p,g,i} dT \right] = \sum_{i,g} Y_i [h_{i,0} + \bar{c}_{p,g,i} T_g] \quad (3.26)$$

eingesetzt wird.  $h_{i,0}$  ist die Standardbildungsenthalpie bei  $T_0=0$  K. Der Querstrich über dem Symbol für die Wärmekapazität deutet an, daß es sich um einen konstanten bzw. über das Temperaturintervall  $[0 \text{ K}; T_g]$  gemittelten Wert handelt.

Der Wärmeübergangskoeffizient  $\alpha$  muß mittels eines Nusselt-Gesetzes bestimmt werden. Er kann zusätzlich um einen Strahlungsanteil korrigiert werden, um den Wärmeaustausch durch Strahlung quer zur Strömungsrichtung zu berücksichtigen. In Strömungsrichtung wird durch die oben genannte Formulierung der Energiegleichung keine Strahlung berücksichtigt.

Die frei werdende Reaktionswärme einer heterogenen Reaktion geht gemäß den hier genannten Gleichungen ausschließlich in die Energiebilanz der Partikelphase ein, was einen Grenzfall darstellt.

In dem letzten Term der Energiegleichung (3.25) steht die Temperatur einer Gaskomponente, die an einer heterogenen Reaktion beteiligt ist. Hierbei stellt sich die Frage, ob diese Komponente Gastemperatur oder Partikeltemperatur hat. Dies könnte man z.B. abhängig davon entscheiden, ob die Komponente über alle heterogenen Reaktionen verbraucht oder produziert wird.

Bei diesen Details der Formulierungen der Reaktionswärme sind einige Entscheidungen mehr oder weniger willkürlich zu treffen. Vermutlich werden die entsprechenden Annahmen in den meisten Fällen keinen großen Einfluß auf die Resultate einer Simulation haben. Um dies abzusichern, müßten verschiedene Grenzfälle berechnet und verglichen werden (siehe auch [59]).

Energie (Partikeln):

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [(1 - \phi) \rho_p \bar{c}_{p,p} T_p] + \frac{\partial}{\partial y} [(1 - \phi) \rho_p v_p \bar{c}_{p,p} T_p] = \frac{\partial}{\partial y} \left[ (1 - \phi) \lambda_p \frac{\partial T_p}{\partial y} \right] \\ - \frac{3(1 - \phi)}{r_p} \alpha (T_p - T_g) - \sum_{i, \text{ges}} h_{i,0} \sum_{j, \text{het}} w_{ij} - \sum_{i,g} (\bar{c}_{p,i} T) \sum_{j, \text{het}} w_{ij} \end{aligned} \quad (3.27)$$

Sowohl der Wärmeaustauschterm durch Konvektion und Strahlung quer zur Strömungsrichtung (4. Term) als auch der Term zur Beschreibung der bei einer heterogenen Reaktion beteiligten gasförmigen Komponenten (6. Term) sind bis auf das Vorzeichen identisch mit den entsprechenden Termen in der Energiegleichung für die Gasphase.

Ob im Wärmeleitungsterm das  $\lambda_p$  der reinen Phase eingesetzt wird oder ein korrigierter Wert, der auch die Strahlung berücksichtigt, müßte im Einzelfall weiter diskutiert werden.

In den Energiegleichungen sowohl für die Gas- als auch für die Partikelphase werden die kinetische Energie und die Arbeit der Druck- und Reibungskräfte vernachlässigt.

Species (Gas):

$$\frac{\partial}{\partial t} (\phi \rho_g Y_i) + \frac{\partial}{\partial y} (\phi \rho_g v_g Y_i) = \frac{\partial}{\partial y} \left( \phi \rho_g D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) + \sum_{j, \text{ges}} w_{ij} \quad (3.28)$$

Die Diffusion wird durch den Fickschen Ansatz wiedergegeben. Die Form des Quellterms  $w_{ij}$  wurde bereits oben genannt.

Sofern die Partikeln nur aus einer Komponente (in dieser Arbeit Kohlenstoff) bestehen, ist eine Speciesgleichung für die feste Phase nicht nötig.

Die Gleichungen (3.19)-(3.28) beschreiben die Strömung und die Reaktionen in der Schüttung. Allerdings stellen sie ein relativ komplexes System dar, das aufwendig zu lösen ist. Es ergeben sich Probleme mit der Modellierung und mit der Rechenzeit. Zusätzlich werden teilweise Effekte erfaßt, die für das Ziel der vorliegenden Arbeit unwesentlich sind. Daher werden zusätzlich zu den bereits erwähnten Annahmen (wie Vernachlässigung der Auftriebskräfte) folgende Vereinfachungen bzw. Setzungen benutzt:

1. Die Partikeldichte und der Partikelradius bleiben konstant, d.h. der Abbrand der Partikeln wird bezüglich ihrer Form und Dichte vernachlässigt, die Geschwindigkeit  $v_p$  ist gleich Null, die Schüttungsporosität  $\phi = \text{konstant}$ . Dies ist eine gravierende Vereinfachung der Beschreibung der festen Phase. Sie erscheint gerechtfertigt, da die Partikeln sehr langsam abbrennen, und die auftretenden Gasgeschwindigkeiten ungefähr um das Verhältnis  $\rho_p/\rho_g$  größer sind als die sich einstellenden Partikelgeschwindigkeiten, wenn der Abbrand doch berücksichtigt wird. Bei einer hinreichend langen Schüttung ist auch der Fehler, der durch die Vernachlässigung der Verkürzung der Schüttung durch den Abbrand gemacht wird, ohne Bedeutung.

Die korrekte Beschreibung des Abbrandes stellt, wie schon im Zusammenhang mit der Kontinuitätsgleichung der festen Phase weiter oben diskutiert, sowohl für die physikalische Formulierung als auch für die numerische Modellierung hohe Anforderungen. Vom physikalischen Standpunkt her besteht die Schwierigkeit, eine Abnahme der Dichte, des Radius und die daraus eventuell resultierende Veränderung der Schüttungsporosität korrekt zu beschreiben. Numerisch gesehen ergeben sich auch für die Grenzfälle Probleme: Ein gegen Null gehender Partikelradius führt zu Schwierigkeiten, da in der Formulierung für die Reaktionsterme durch diese Größe dividiert wird. Eine gegen Null gehende Dichte führt oft bei gezündeten heterogenen Reaktionen und einem lokalen Temperaturmaximum in der Schüttung dazu, daß sich in der Schüttung eine Lücke bildet. Im Experiment würde sich diese Lücke durch ein Nachrutschen der Partikeln schließen, in der Simulation gibt es dabei erhebliche Probleme.

Aufgrund der zahlreichen Schwierigkeiten, die bei der Modellierung des Partikelabbrandes auftreten, findet man auch in neueren Veröffentlichungen an dieser Stelle starke Vereinfachungen [56, 63]. Im Rahmen der Fortführung der hier vorgestellten Arbeit sollte dieser Aspekt daher gesondert untersucht werden.

2. Bedingt durch die kleinen Abbrandraten berechnet die Impulsgleichung einen fast konstanten Druck in der Schüttung. Daher ist es zulässig, den Druck nicht mehr zu berechnen, sondern von  $p = \text{konstant}$  auszugehen.

Dieses Vorgehen hat für die Numerik den großen Vorteil, daß man wesentlich größere Zeitschrittweiten benutzen kann. Wird nämlich die Impulsgleichung benutzt, wird die Zeitschrittweite durch die Auflösung der akustischen Vorgänge (Druckstörungen breiten sich mit Schallgeschwindigkeit aus) bestimmt. Diese Effekte sind aber für das Verhalten der Schüttung bei einem sich langsam ausbreitenden Schwelbrand bzw. der Suche nach einer stationären Lösung belanglos. (Andere Möglichkeiten, die akustischen Wellen von dem restlichen Problem abzukoppeln, sind in [103] beschrieben.)

3. Aufgrund des langsamen Abbrandes wird angenommen, daß sich die Gasphase und die feste Phase im thermischen Gleichgewicht befinden. Daher wird nur eine kombinierte Energiegleichung benutzt und nicht zwischen  $T_g$  und  $T_p$  unterschieden.
4. Zusätzlich wird angenommen, daß alle Stoffwerte konstant sind.  $c_p$  und  $D$  sind außerdem für alle Komponenten gleich. In der Schüttung sollen keine homogenen Reaktionen ablaufen.

Viele der genannten Vereinfachungen sind in [104] näher auf ihre Auswirkungen und Rechtfertigung untersucht worden. Unter Berücksichtigung der eingeführten Annahmen ergibt sich folgendes Gleichungssystem für das Teilsystem der Schüttung:

Kontinuität (Gas):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi\rho_g) + \frac{\partial}{\partial y}(\phi\rho_g v_g) = \sum_{j,ges} \sum_{i,g} w_{ij} \quad (3.29)$$

Energie (Gas+Partikeln):

$$\frac{\partial}{\partial t}[\phi\rho_g\bar{c}_{p,g} + (1-\phi)\rho_p\bar{c}_{p,p}]T + \frac{\partial}{\partial y}[\phi\rho_g v_g\bar{c}_{p,g}T] = \frac{\partial}{\partial y} \left[ \lambda_{eff} \frac{\partial T}{\partial y} \right] - \sum_{i,ges} h_{i,0} \sum_{j,het} w_{ij} \quad (3.30)$$

Die effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung  $\lambda_{eff}$  hat einen Wert zwischen den Grenzwerten des Parallelmodells der beiden Phasen,  $\lambda_{eff} = \phi\lambda_g + (1-\phi)\lambda_p$ , und des Reihenmodells,  $\lambda_{eff} = 1 / \left( \frac{\phi}{\lambda_g} + \frac{1-\phi}{\lambda_p} \right)$  [97]. Dieser Punkt wird in den Kapiteln 4.1 und 4.2 ausführlich diskutiert.

Species (Gas):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi\rho_g Y_i) + \frac{\partial}{\partial y}(\phi\rho_g v_g Y_i) = \frac{\partial}{\partial y} \left( \phi\rho_g D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) + \sum_{j,ges} w_{ij} \quad (3.31)$$

Auf eine dimensionslose Schreibweise wurde hier im Gegensatz zum Teilsystem der Stau- punktströmung verzichtet, da die Gasphase und die feste Phase sehr unterschiedliche charakteristische Größen und Zeitskalen besitzen und man sich keinen Vorteil von der dimensionslosen Formulierung versprochen hat. Zudem verliert die Vereinfachung eines Systems von Differentialgleichungen (3.29)-(3.31) durch Bildung dimensionsloser Größen mit zunehmender Größenanzahl an Bedeutung.

Die Randbedingungen an der Oberfläche der Schüttung und an ihrem anderen Ende werden im nächsten Abschnitt (3.3) besprochen. Um das Modell für die Schüttung sowohl in seiner zunächst genannten komplexen Form als auch mit den Vereinfachungen zu verifizieren, wurden zahlreiche Testrechnungen durchgeführt und mit analytischen Lösungen aus der Literatur verglichen [104]. Die Ergebnisse für zwei dieser Fälle, die inerte Aufheizung einer Schüttung durch einen warmen Gasstrom und die Strömung durch eine Schüttung unter Berücksichtigung einer heterogenen Reaktion, sind im Anhang (Kap. 8.2) dargestellt.

### 3.3 Rand- und Kopplungsbedingungen

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die Differentialgleichungen für die Bereiche der Staupunktströmung und der Schüttung formuliert. Zur Lösung der Gleichungen (3.14)-(3.17) und (3.29)-(3.31) sind Randbedingungen am Grenzschichttrand der Anströmung und am verschlossenen Ende der Schüttung nötig. Außerdem ist es erforderlich, Bedingungen für die Systemgrößen an der Oberfläche der Schüttung aufzustellen, um eine Kopplung der beiden Teilsysteme „Schüttung“ und „Anströmung“ zu ermöglichen.

#### Grenzschichttrand

Am Grenzschichttrand ( $y = y_e$  bzw.  $\eta = \eta_e$ ) werden die Temperatur und die Zusammensetzung des anströmenden Gases vorgegeben. Die Geschwindigkeit  $u$  hat dort den Wert der Geschwindigkeit in der reibungsfreien Außenströmung.

$$\begin{aligned} u &= u_e \\ T &= T_e \\ Y_i &= Y_{i,e} \end{aligned} \quad (3.32)$$

Die Erhaltungsgleichungen werden in einer dimensionslosen Formulierung verwendet, die entsprechenden Randbedingungen lauten dann

$$\begin{aligned} f_\eta &= \frac{u}{u_e} = 1 \\ \theta &= \theta_e \\ Y_i &= Y_{i,e} \end{aligned} \quad (3.33)$$

#### Verschlossenes Ende der Schüttung

Am verschlossenen Ende der Schüttung ( $y = L, L < 0$ ) sind Randbedingungen für die Gasgeschwindigkeit, die Temperatur und die Gaskonzentration erforderlich. Da das Ende verschlossen ist und kein Gas an dieser Stelle in die Schüttung hinein oder aus der Schüttung heraus transportiert werden kann, ist sowohl die Gasgeschwindigkeit als auch der Gradient des Massenbruchs der Komponente  $i$  gleich Null. Für die Temperaturrandbedingung gibt es verschiedene Möglichkeiten: Es kann eine feste Temperatur vorgegeben werden, das Ende kann als adiabat angesehen werden oder es kann ein Wärmeübergangsgesetz benutzt werden, um die Temperatur am Schüttungsende mit der Temperatur in der Umgebung zu verknüpfen. In der Regel wurde mit einer fest vorgegebenen Temperatur gearbeitet. Die Benutzung der beiden anderen Varianten stellt keine Schwierigkeit dar; die Auswirkung der Randbedingung auf die Ergebnisse wird in Kapitel 4.4 aufgezeigt.

Die benutzten Randbedingungen lauten also:

$$\begin{aligned} v_y &= 0 \\ T &= T_L (= T_e) \\ \frac{\partial Y_i}{\partial y} &= 0 \end{aligned} \quad (3.34)$$

Die in der Schüttung möglichen Reaktionen werden in der Regel nicht im gesamten Bereich der Schüttung ablaufen, sondern in einer Reaktionszone in der Nähe der Oberfläche, da dort der notwendige Oxidator und die notwendige Energie zugeführt werden. In dem Bereich, in dem keine Reaktionen ablaufen, stellt sich für den stationären Fall eine Lösung ein, die nicht numerisch berechnet werden muß, sondern die man analytisch angeben kann. Die Schüttung kann in zwei Bereiche unterteilt werden: Einen Bereich der Reaktionszone ( $L' \leq y \leq 0$ ), der das Rechengebiet darstellt, und einen Bereich ( $L \leq y < L'$ ), in dem eine analytische Lösung angegeben werden kann. Für die numerische Berechnung müssen daher Randbedingungen nicht an der Stelle  $L$ , sondern an der Stelle  $L'$  vorgegeben werden.

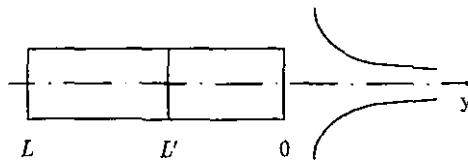


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Rechengebiets

Im Bereich  $L \leq y < L'$  laufen keine Reaktionen ab, die Geschwindigkeit ist dort für den stationären Fall gleich Null. Daraus ergibt sich, daß auch der Gradient des Massenbruchs bei  $L'$  gleich Null ist, weil keine Konvektion und keine Diffusion über  $L'$  hinaus auftritt. Für die Energiegleichung reduziert sich das Problem auf den Fall der reinen Wärmeleitung für  $L \leq y < L'$ . Im stationären Fall muß sich ein lineares Temperaturprofil einstellen:  $\frac{\partial T}{\partial y}|_{L'} = \frac{T_{L'} - T_L}{L' - L}$ . Diese Gleichung stellt eine Kopplung von dem Wert  $T_L$  und dem Gradienten  $\frac{\partial T}{\partial y}|_{L'}$  dar, die beide unbekannt sind und sich erst durch die Rechnung ergeben. Die Erfüllung dieser Randbedingung ist also nur iterativ möglich. Für die numerische Berechnung werden die Randbedingungen demzufolge bei  $L'$  ( $L < L' < 0$ ) vorgegeben, sie lauten:

$$\begin{aligned} v_y &= 0 \\ \frac{\partial T}{\partial y}|_{L'} &= \frac{T_{L'} - T_L}{L' - L} \\ \frac{\partial Y_i}{\partial y} &= 0 \end{aligned} \quad (3.35)$$

### Oberfläche der Schüttung

An der Oberfläche der Schüttung ( $y=0$ ) werden Bilanzen formuliert, um die Erhaltungsgleichungen für den Bereich der Anströmung mit denen für den Bereich der Schüttung zu koppeln. Es wird dabei vorausgesetzt, daß der Druck (der ohnehin konstant gesetzt wurde), die Temperatur und die Konzentration an der Oberfläche trotz der plötzlichen Erweiterung der Querschnittsfläche, die für die Gasströmung zur Verfügung steht, stetig verlaufen. Aufgrund der geringen Strömungsgeschwindigkeit ist diese Voraussetzung sehr gut erfüllt.

$$\begin{aligned} p_{|0^-} &= p_{|0^+} \\ T_{|0^-} &= T_{|0^+} \\ Y_{i|0^-} &= Y_{i|0^+} \end{aligned} \quad (3.36)$$

Für die Geschwindigkeit parallel zur Oberfläche gilt an der Oberfläche die Haftbedingung. Zur Kopplung der Geschwindigkeiten normal zur Oberfläche, der Temperatur und der Konzentrationen werden die Bilanzen für Masse, Energie und Species benutzt.

Haftbedingung:

$$u = 0 \quad (3.37)$$

Massenbilanz:

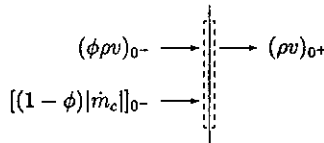


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der Massenbilanz an der Oberfläche

$$(\rho v)_{0^+} = (\phi \rho v)_{0^-} + [(1 - \phi) \dot{m}_c]_{0^-} \quad (3.38)$$

Der aus der Schüttung austretende Gasstrom setzt sich aus zwei Anteilen zusammen: Gas, das durch den Abbrand von inneren Oberflächen entsteht und Gas, das durch den Stirnflächenabbrand der Schüttung entsteht.

Energiebilanz:

In der Energiebilanz werden die Wärmeleitung in der Schüttung und in der Anströmung, die Reaktionswärme der Reaktionen an der Stirnfläche, ein von außen zugeführter Wärmefluß  $\dot{q}$  und der Strahlungsaustausch mit der Umgebung berücksichtigt ( $\dot{q}_R = \sigma(T_0^4 - T_e^4)$  für schwarze Körper).

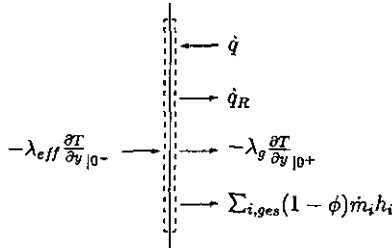


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Energiebilanz an der Oberfläche

$$\dot{q} - \left( \lambda_{eff} \frac{\partial T}{\partial y} \right)_{0-} = \dot{q}_R - \left( \lambda_g \frac{\partial T}{\partial y} \right)_{0+} + \sum_{i,ges} (1 - \phi) \dot{m}_i h_i \quad (3.39)$$

Der externe Wärmefluß  $\dot{q}$  stellt hierbei einen freien Parameter dar. In Analogie zum Experiment kann man entweder  $\dot{q}$  beliebig vorgeben, die Oberflächentemperatur der Schüttung stellt sich dann dementsprechend ein. Oder aber die Oberflächentemperatur wird vorgegeben und aus der Energiebilanz ergibt sich derjenige Wärmestrom  $\dot{q}$ , der nötig ist, um die gewählte Oberflächentemperatur aufrecht zu halten.

Speciesbilanz:

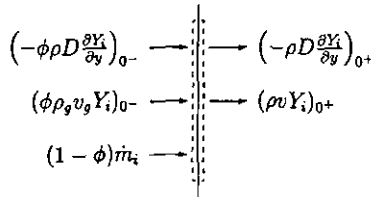


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Speciesbilanz an der Oberfläche

$$[(\rho v)_{0+} - (\phi \rho v)_{0-}] Y_{i,0} = (1 - \phi) \dot{m}_i + \left( \rho D \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right)_{0+} - \left( \phi \rho D \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right)_{0-} \quad (3.40)$$

Hier werden sowohl Konvektion und Diffusion in der Gasphase als auch Produktion bzw. Verbrauch von Species durch die Reaktionen an der Stirnfläche berücksichtigt.

Für die Erhaltungsgleichungen im Bereich der Anströmung werden dimensionslose Größen benutzt, daher müssen auch die Haftbedingung und die Bilanzen entsprechend formuliert werden.

Haftbedingung:

$$f_{\eta} = \frac{u}{u_e} = 0 \quad (3.41)$$

Massenbilanz:

$$V_w = \frac{(\rho v)_{0+}}{2\sqrt{a(\rho\mu)_r}} \quad \text{mit} \quad (\rho v)_{0+} = (\phi\rho v)_{0-} + [(1-\phi)|\dot{m}_c]_{0-} \quad (3.42)$$

Energiebilanz:

$$\frac{\dot{q} - \dot{q}_R - \left(\lambda_{eff} \frac{\partial T}{\partial y}\right)_{0-}}{c_p T_r \sqrt{a(\rho\mu)_r}} = -\frac{\ell}{Pr} \frac{\partial \theta}{\partial \eta}|_{0+} + \sum_{i,ges} (1-\phi) \frac{\dot{m}_i}{\sqrt{a(\rho\mu)_r}} H_i \quad (3.43)$$

Speciesbilanz:

$$\left[ V_w - \frac{(\phi\rho v)_{0-}}{2\sqrt{a(\rho\mu)_r}} \right] Y_{i,0} = \frac{(1-\phi)\dot{m}_i}{2\sqrt{a(\rho\mu)_r}} + \frac{\ell Le}{2Pr} \frac{\partial Y_i}{\partial \eta}|_{0+} - \frac{1}{2\sqrt{a(\rho\mu)_r}} \left( \phi\rho D \frac{\partial Y_i}{\partial \eta} \right)_{0-} \quad (3.44)$$

### 3.4 Numerische Methode

Zur Diskretisierung der Differentialgleichungen wird die Finite-Volumen-Methode [105] benutzt. Die numerische Lösung der Gleichungen erfolgt mit einer modifizierten Form des PISO-Verfahrens (Pressure Implicit with Splitting of Operators) [9-11].

Bei der Finite-Volumen-Methode wird das Rechengebiet in eine Anzahl von Kontrollvolumen unterteilt, die jeweils einen Gitterpunkt umschließen, sich nicht überlappen und das gesamte Rechengebiet abdecken. Die Differentialgleichungen werden über jedes Kontrollvolumen (und im instationären Fall über jeden Zeitschritt) integriert, wobei stückweise definierte Funktionen der Variablen zwischen den Gitterpunkten angenommen werden müssen, um die Integration durchführen zu können. Man erhält auf diese Weise Differenzgleichungen, die als Unbekannte die Werte der Variablen an einem Gitterpunkt und seinen Nachbarpunkten enthalten. Diese Gleichungen müssen gelöst werden.

Ein Vorteil der Finite-Volumen-Methode ist, daß die Erhaltung von Masse, Energie und Species über das gesamte Rechengebiet immer, auch bei groben Gittern, gewährleistet ist. Dies ist ein Unterschied zum Finite-Differenzen-Verfahren, bei dem die globalen Bilanzen nur bei hinreichend feinen Gittern erfüllt werden. Zudem ist die Methode der finiten Volumen physikalisch anschaulicher und die Herleitung mathematisch weniger aufwendig als die Finite-Elemente-Methode, die oft als überlegen bei komplexen Gittergeometrien angesehen wird. Weitere Einzelheiten und das konkrete Vorgehen bei der Diskretisierung mit Hilfe von finiten Volumen können bei Patankar [105] nachgelesen werden.

Bevor das zur Lösung der Differenzgleichungen gewählte PISO-Verfahren beschrieben wird, sollen kurz andere Lösungsmöglichkeiten diskutiert werden. Eine Vereinfachung

ist bei eindimensionalen Formulierungen häufig durch die Einführung einer Lagrange-Koordinate  $\psi$  [106, 107] möglich:  $\psi(x, t) = \int_0^x \rho(\bar{x}, t) d\bar{x}$ . Wenn  $\psi$  und  $t$  als unabhängige Variable betrachtet werden, ist die Kontinuitätsgleichung identisch erfüllt und die Geschwindigkeit entkoppelt von den anderen Variablen wie Temperatur und Massenbruch. Diese Vorgehensweise läßt sich in dem in dieser Arbeit vorliegenden Fall nicht bzw. nur bedingt anwenden. Da in den Erhaltungsgleichungen für die Staupunktströmung zwei Geschwindigkeitskomponenten auftreten und in der Kontinuitätsgleichung für die Schüttung ein Quellterm auftritt (durch die feste Phase), führt die Lagrange-Transformation nicht zu den erhofften Vorteilen.

Gewählt werden sollte ein flexibles Verfahren, das auch angewendet werden kann, wenn andere oder weniger Vereinfachungen in den Differentialgleichungen benutzt werden als in den vorangegangenen Kapiteln beschrieben. Eines der gebräuchlichsten Verfahren zur Lösung der Erhaltungsgleichungen bei parabolischen Problemen ist das SIMPLE Verfahren (Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equations) [105] und seine Abwandlungen, SIMPLEC (SIMPLE consistent) [108] und SIMPLER (SIMPLE revised) [109]. Die Kopplung von Druck und Geschwindigkeit, die das Hauptproblem für die numerische Lösung darstellt, wird hierbei durch Iterationen innerhalb jedes Zeitschritts berücksichtigt. Dabei werden Druck und Geschwindigkeit solange korrigiert bis die Kontinuitätsgleichung erfüllt ist.

Diese Iterationen sind zeitaufwendig; zusätzlich ist in der Regel eine Unterrelaxation notwendig, um die Konvergenz des Verfahrens zu gewährleisten. Daher wurde von Issa das PISO-Verfahren vorgeschlagen, das die Iterationen durch die Aufspaltung jedes Zeitschritts in einen Prediktor- und zwei Korrektorschritte umgeht. Bei vergleichenden Rechnungen zwischen den einzelnen Verfahren schneidet das PISO-Verfahren immer besser ab als die SIMPLE-Methode, solange nicht eine skalare Variable stark mit der Impulsgleichung gekoppelt ist (Beispiel: Die Temperatur tritt im Quellterm der Impulsgleichung bei freier Konvektion auf.) [10, 11, 110, 111]. Daher wurde das PISO-Verfahren als Lösungsmethode gewählt.

Der PISO-Algorithmus hat bei der Berechnung von reagierenden Strömungen folgenden Aufbau innerhalb eines Zeitschritts [11]: Ausgehend von einem bekannten Druckfeld wird im Prediktorschritt das Geschwindigkeitsfeld durch die Lösung der (implizit formulierten) Impulsgleichungen bestimmt. Dieses Geschwindigkeitsfeld wird in der Regel die Kontinuitätsgleichung nicht erfüllen. Zusätzlich werden im Prediktorschritt auch die Energie- und Speciesgleichungen implizit gelöst. Im anschließenden Korrektorschritt wird der Druck aus einer Kombination von Kontinuitätsgleichung und Impulsgleichungen, der sogenannten Druckgleichung, implizit berechnet. Dann werden die Impulsgleichungen (für die Geschwindigkeiten) sowie die Energie- und Speciesgleichungen explizit gelöst. Zu diesem Zeitpunkt ist auch die Kontinuitätsgleichung erfüllt. Um die Genauigkeit der Lösung zu erhöhen, wird ein zweiter Korrektorschritt durchlaufen bevor die Rechnung zum nächsten Zeitschritt übergeht.

Für die vorliegende Arbeit wurde eine Modifikation des PISO-Verfahrens vorgenommen. In der Grenzschicht der Anströmung ist  $\frac{\partial p}{\partial y} = 0$ , der Druck somit auf der betrachteten Staupunktlinie konstant, und auch der Druck in der Schüttung wurde nach vorangegangenen Testrechnungen als konstant angenommen. Daher entfällt die Druckgleichung, die

Geschwindigkeit kann in der Schüttung direkt aus der Integration der Kontinuitätsgleichung berechnet werden. In der Anströmung stellt die Impulsgleichung eine Gleichung für die Geschwindigkeitskomponente parallel zur Wand ( $f_\eta$ ) dar. Die Geschwindigkeitskomponente normal zur Wand ( $V$ ) kann analog zum Vorgehen in der Schüttung aus der Integration der Kontinuitätsgleichung berechnet werden. Diese Modifikationen sind in [112, 104] ausführlich dokumentiert und getestet worden, das Vorgehen liefert korrekte Ergebnisse. Trotz dieser Abwandlung wurde prinzipiell am PISO-Verfahren festgehalten, um flexibel für weitere Ausbaustufen des Programms zu sein und nicht bei Erweiterungen gegebenenfalls gezwungen zu sein, einen komplett neuen Lösungsalgorithmus installieren zu müssen.

Abschließend sollen in diesem Kapitel einige wichtige Details zur numerischen Lösung genannt werden: Es kann zu physikalisch unsinnigen Ergebnissen für Druck und Geschwindigkeiten kommen, wenn diese Werte an denselben Gitterpunkten bestimmt werden [105]. Patankar [105] schlägt daher vor, bei der Diskretisierung ein geschachteltes bzw. gestaffeltes Gitter („staggered grid“) zu benutzen, bei dem die Kontrollvolumen für die Geschwindigkeiten im Vergleich zu den Kontrollvolumen für die skalaren Variablen versetzt sind. Dieses Vorgehen wurde übernommen.

Typisch bei Verbrennungsvorgängen sind Bereiche großer Gradienten und starker Krümmung für Größen wie Temperatur und Konzentrationen auf der einen Seite und Bereiche geringer chemischer Aktivität auf der anderen Seite. Es erscheint daher sinnvoll bzw. erforderlich, einen numerischen Algorithmus zu benutzen, der die Größe der Gitterzellen selbständig optimiert, um zu jeder Zeit an jedem Ort möglichst effektiv und mit gleichbleibend geringem Fehler zu rechnen. Dieses adaptive Gitter wird im vorliegenden Programm anhand der Gradienten und Krümmungen der Verläufe von Temperatur und Massenbrüchen der Komponenten regelmäßig kontrolliert und gegebenenfalls lokal vergrößert bzw. verfeinert. Das Vorgehen erfolgt in Anlehnung an Rogg [113] und ist bei Weitzel [114] beschrieben.

Ebenfalls sinnvoll ist eine Steuerung der Zeitschrittweite. Diese wurde auf zwei unterschiedlichen Wegen implementiert: Die Steuerung kann (in Analogie zur adaptiven Gittersteuerung) durch Berücksichtigung der ersten und zweiten zeitlichen Ableitung wichtiger Variablen [115] oder durch die Abschätzung von Reaktionstermen [104] geschehen. Beide Möglichkeiten führen zu starken Verkürzungen der Rechenzeit gegenüber Rechnungen mit gleichbleibender Zeitschrittweite.

## 4 Zündung der heterogenen Reaktionen

Die in Kapitel 3 vorgestellten Modelle für die Schüttung und die Staupunktanströmung wurden wie beschrieben gekoppelt. So wurde der Abbrand einer angeströmten Schüttung berechnet. Dabei können sowohl heterogene Reaktionen zwischen Feststoff und Gas im Inneren der Schüttung als auch eine homogene Gasphasenreaktion in der Grenzschicht der Anströmung ablaufen. Homogene Reaktionen in der Schüttung sind grundsätzlich auch möglich, wurden hier aber nicht berücksichtigt.

Da sowohl heterogene als auch homogene Reaktionen möglich sind, können sich zwei Reaktionszonen ausbilden. Die Reaktionszone im Inneren der Schüttung wird sich nahe oder an der Oberfläche der Schüttung befinden, da dort sowohl die Energie als auch der notwendige Oxidator zugeführt werden. Die homogene Reaktion, im vorliegenden Fall die  $CO$ -Oxidation, kann direkt an der Oberfläche oder an einer Stelle in der Grenzschicht ablaufen - dies entspricht einer an der Oberfläche anliegenden bzw. einer abgelösten Flamme. Diese möglichen Fälle - eine bzw. zwei Reaktionszonen - sind zusammen mit qualitativ zu erwartenden Temperaturprofilen in Abbildung 4.1 skizziert. Die Profile werden im weiteren Verlauf noch eingehend besprochen.

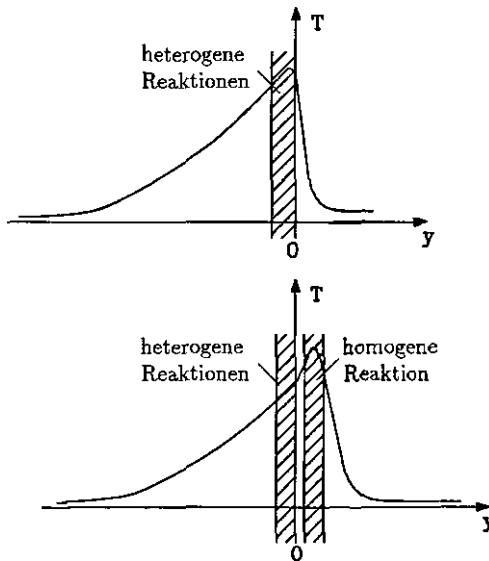


Abbildung 4.1: Zonen der gezündeten heterogenen bzw. heterogenen und homogenen Reaktionen

Die heterogenen Reaktionen werden bereits bei niedrigen Temperaturen ablaufen, da eine sehr große innere Oberfläche für die Reaktionen zur Verfügung steht. Wenn hinreichend  $CO$  produziert wird und die eingebrachte Energie ausreicht, wird bei höheren Tempe-

ratoren auch die homogene Reaktion zünden. Diese Fälle sollen hier getrennt betrachtet werden. Zunächst wird in Kapitel 4 die heterogene Zündung besprochen bevor in Kapitel 5 die anschließende homogene Zündung diskutiert wird.

Alle Ergebnisse, die im folgenden vorgestellt werden, sind stationäre Lösungen. Sie wurden erzeugt unter den Voraussetzungen, die bereits in Kapitel 3 ausführlich diskutiert wurden, insbesondere für eine konstante Schüttungslänge und unter Vernachlässigung einer Radius- bzw. Dichteänderung der Partikeln. Die Oberflächentemperatur der Schüttung  $T_S$  wurde in der Regel als vorgegebene Steuergröße in den Rechnungen benutzt, der notwendigerweise zuzuführende externe Wärmestrom  $\dot{q}$  ergibt sich aus der Energiebilanz an der Oberfläche der Schüttung. Alternativ kann auch  $\dot{q}$  vorgegeben werden, die Oberflächentemperatur ist dann ein Ergebnis der Rechnung.

#### 4.1 Charakteristische Effekte

In diesem Kapitel wird die Zündung der heterogenen Reaktionen betrachtet. Abbildung 4.2 zeigt typische Verläufe der Temperatur, der Massenbrüche von Sauerstoff, Kohlenmonoxid und Kohlendioxid und der Reaktionsrate von Kohlenstoff für den Fall der gezündeten Reaktionen. Die Oberfläche der Schüttung liegt immer bei der Ortskoordinate  $y=0$ , so daß auf der linken Seite der Abbildung ( $y < 0$ ) die Verläufe in der Schüttung und rechts ( $y > 0$ ) die Verläufe in der Grenzschicht zu sehen sind. Die beiden Koordinatenbereiche werden hier mit einem unterschiedlichen Maßstab wiedergegeben, um die Verläufe deutlich erkennbar werden zu lassen. Die Strömungsgrenzschicht ist dünner als 1 mm, während die Reaktionszone in der Schüttung ca. 20 cm dick ist.

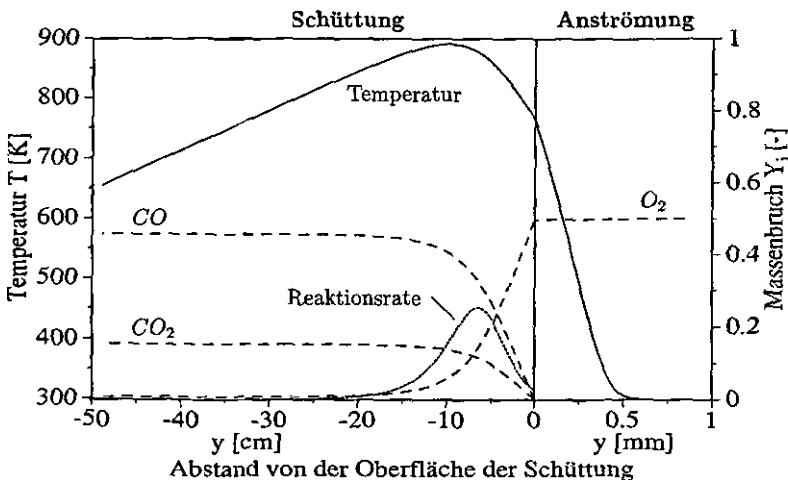


Abbildung 4.2: Typische Profile für den Fall gezündeter heterogener Reaktionen

Der Temperaturverlauf hat ein Maximum im Inneren der Schüttung. Dies zeigt, daß dort exotherme Reaktionen ablaufen – die heterogenen Reaktionen sind gezündet. Dahingegen zeigt der monoton abfallende Temperaturverlauf in der Grenzschicht, daß dort noch keine Reaktionen ablaufen. Das Maximum der Temperatur liegt im Inneren und nicht an der Oberfläche der Schüttung, da es hier zu Wärmeverlusten durch die Strahlung an die Umgebung kommt, und die Reaktion daher im Inneren stärker abläuft.

Wenn eine exotherme Reaktion abläuft, wird in der Reaktionszone Wärme frei. Wenn die Rate der Wärmeproduktion größer ist als die Abfuhr von Wärme (durch Leitung, Konvektion oder Strahlung), kommt es zur Zündung. Im Inneren der Schüttung kann sich Wärme stauen, und genügend  $O_2$  ist dort vorhanden. Daher muß die Zündung nicht an der Oberfläche erfolgen.

Die Temperaturgradienten an der Oberfläche sind in der Schüttung und in der Grenzschicht sehr unterschiedlich. (Aufgrund der zwei verschiedenen Maßstäbe für die y-Koordinate ist der Unterschied größer als in Abbildung 4.2 zu sehen.) Dies kommt durch die unterschiedliche Wärmeleitfähigkeit in Schüttung und Anströmung, die Strahlungsverluste an der Oberfläche und den hier zugeführten externen Wärmestrom. Die Energiebilanz (Gl. 3.39) macht diese Zusammenhänge deutlich. Analog ändert sich auch der Gradient der Verläufe der Massenbrüche.

Nachdem die typischen Verläufe für den Fall der gezündeten Reaktionen erklärt wurden, soll jetzt die Zündung selbst genauer untersucht werden. Abbildung 4.3 zeigt Temperaturverläufe und Reaktionsraten über den Ort (nur in der Schüttung). Wie zu erkennen ist, stellt sich für Oberflächentemperaturen  $T_S \leq 692$  K ein monoton fallendes Temperatur-

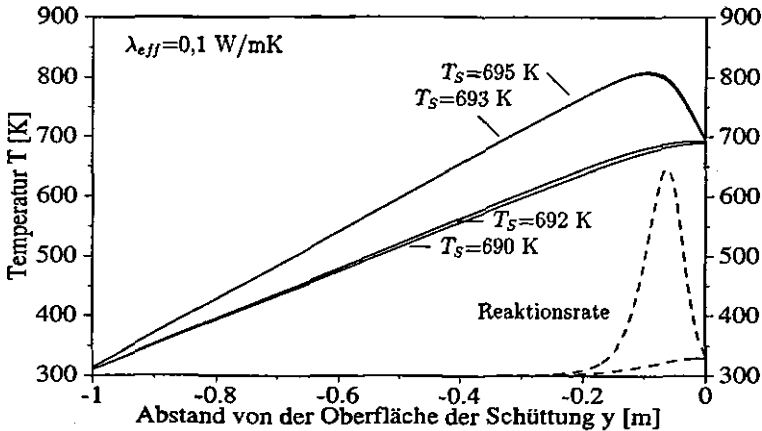


Abbildung 4.3: Temperatur und Reaktionsrate des Kohlenstoffs in Abhängigkeit des Abstands von der Oberfläche der Schüttung für verschiedene Oberflächentemperaturen  $T_S$  ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ )

profil in der Schüttung ein. Es laufen nur schwache Reaktionen ab, und die Konvektion ist aufgrund der geringen Gasbildung klein. Daher ist das Temperaturprofil fast linear, wie es für diesen Fall eines fast reinen Wärmeleitungsproblems zu erwarten ist. Wird die Oberflächentemperatur nur um 1 K auf 693 K erhöht, ändert sich die Lösung völlig. Es bildet sich ein deutliches Temperaturmaximum ( $T_{max}$  über 100 K höher als  $T_s$ ) im Inneren, das Maximum der Reaktionsrate liegt auch nicht länger an der Oberfläche und es hat einen um ein Vielfaches höheren Wert als im Fall der niedrigeren Oberflächentemperatur. Diese Effekte sind auf die Zündung der heterogenen Reaktionen zurückzuführen. Eine kleine Änderung in den Randbedingungen kann zu einer völlig anderen Antwort des Systems führen.

Die Zündung der Reaktionen führt zu einem unstetigen Ansteigen des Massenabbrandes  $\dot{m}$  der Schüttung (Abb. 4.4). Dieser Effekt ist nicht sichtbar in den Ergebnissen von Henriksen [80], die dieser für den Fall des Abbrandes einer angeströmten Kohlenstoffoberfläche berechnet hat. Der Grund liegt darin, daß die Reaktionen in der Schüttung bei Temperaturen ablaufen, die höher sind als  $T_s$ . Bei einer geschlossenen Oberfläche hingegen laufen die Reaktionen zwangsweise immer bei  $T_s$  ab. Dabei zeigt sich bei einer Auftragung des Massenabbrandes über der Oberflächentemperatur, wie in Abbildung 4.4, dieser deutliche Umschlag vom nicht-gezündeten zum gezündeten Zustand einer Schüttung.

Einen entsprechenden, unstetigen Verlauf sieht man auch in einer Auftragung der Oberflächentemperatur  $T_s$  über dem externen Wärmestrom zur Oberfläche  $\dot{q}$  (Abb. 4.5). Diese Abbildung kann auf zwei Arten gelesen werden. Wenn die Oberflächentemperatur über den Zündpunkt hinaus erhöht wird, ist ein geringfügig niedrigerer Wärmestrom zur Oberfläche nötig, um den Abbrand aufrecht zu erhalten. Dies kommt dadurch, daß im gezündeten Fall Wärme vom Temperaturmaximum in der Schüttung zur Oberfläche transportiert wird. Im Experiment wird man oft einen externen Wärmestrom, nicht aber die Oberflächentemperatur steuern können. Auch diese Sichtweise läßt sich in der Abbildung wiederfinden. Wird der externe Wärmestrom geringfügig über den Zündpunkt hinaus erhöht, macht sich dies durch eine unstetige Erhöhung der Oberflächentemperatur bemerkbar. Deutlicher sichtbar wird diese Erhöhung bei einer Auftragung der maximalen Temperatur in der Schüttung über dem Wärmestrom - solche Auftragungen werden an späterer Stelle in diesem Kapitel diskutiert.

Bisher wurde nur der Zündpunkt diskutiert, die Abbildungen 4.4 und 4.5 zeigen aber auch den Löschpunkt der heterogenen Reaktionen. Hat man gezündete Reaktionen vorliegen, muß die Oberflächentemperatur bzw. der externe Wärmestrom deutlich unter den Wert des Zündpunktes gesenkt werden, um die Reaktionen zu verlöschen. Dies führt zur Existenz von Mehrfachlösungen: In einem bestimmten Bereich von  $T_s$  liegen zwei stabile Werte für den Massenabbrand vor (Abb. 4.4), entsprechend existieren für einen bestimmten Bereich von  $\dot{q}$  zwei stabile Lösungen für die Oberflächentemperatur (Abb. 4.5). Zwischen den zwei stabilen Lösungen liegt jeweils noch eine physikalisch instabile Lösung. Welche Lösung sich einstellt, hängt von den Anfangsbedingungen des Systems ab. Dies gilt sowohl für numerische Berechnungen als auch für Experimente.

Die vorgestellten S-förmigen Verläufe sind typisch für viele Zünd- und Löschvorgänge in Verbrennungssystemen. An den Umkehrpunkten der Kurve, wo die Steigung eine Singularität besitzt, springt die Lösung von einem Ast zum anderen. Diese Diskontinuitäten in

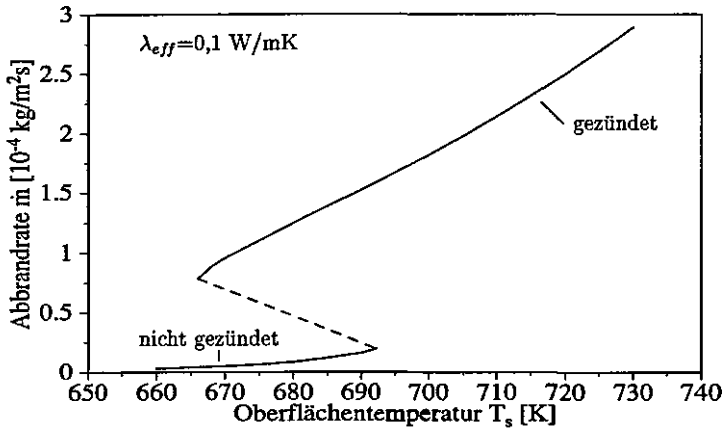


Abbildung 4.4: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$   
 $(\alpha=300 \text{ 1/s}, Y_{O_2,e}=0,5)$

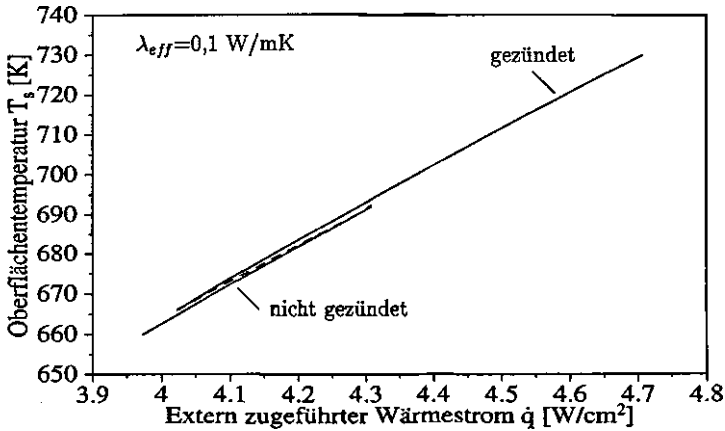


Abbildung 4.5: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  ( $\alpha=300 \text{ 1/s}, Y_{O_2,e}=0,5$ )

der stationären Lösung kennzeichnen Zünd- bzw. Löschpunkte, die damit leicht zu finden bzw. zu charakterisieren sind.

Es läßt sich aber zeigen, daß das Zünden und Löschen von Reaktionen nicht zwangsweise mit solchen Unstetigkeitsstellen verbunden ist. Abbildung 4.6 zeigt Temperaturverläufe in der Schüttung für verschiedene Oberflächentemperaturen  $T_S$ . Entsprechende Ergebnisse wurden bereits in Abbildung 4.3 für einen kleineren Wert der effektiven Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{eff}$  der Schüttung gezeigt. Bei Abbildung 4.6 beträgt der Wert  $\lambda_{eff}=2,5$  W/mK, in der Abbildung 4.3 sind es 0,1 W/mK. Es ist zu sehen, daß sich für den höheren Wert der Wärmeleitfähigkeit bei einer Änderung der Oberflächentemperatur nicht plötzlich ein deutliches Temperaturmaximum in der Schüttung aufbaut, sondern daß dies allmählich mit größer werdendem  $T_S$  geschieht. Man kann also den Fall erreichen, daß die heterogenen Reaktionen gezündet sind – aufgrund der freigesetzten Wärme kommt es zu einem Temperaturmaximum im Inneren der Schüttung. Aber es läßt sich keine Oberflächentemperatur finden, bei der explizit ein Umschlag von der nicht gezündeten in die gezündete Lösung stattfindet. Dieses Verhalten findet man bei den Auftragungen des Massenabbrandes der Schüttung über der Oberflächentemperatur (Abb. 4.7) und der Oberflächentemperatur über dem externen Wärmestrom (Abb. 4.8) wieder. Die Verläufe sind stetig und zeigen nicht die ausgeprägten Zünd- und Löschpunkte, wie sie in den Abbildungen 4.4 und 4.5 zu sehen sind. Demzufolge existieren auch keine Mehrfachlösungen für einen bestimmten Wertebereich von  $\dot{q}$  bzw.  $T_S$ . Offensichtlich wird durch die höhere Wärmeleitfähigkeit zuviel Wärme aus der Reaktionszone abtransportiert, als daß sich die Wärme stauen und zu einem plötzlichen Zünden führen könnte. Da bei einer niedrigen Temperatur (z.B.  $T_S=790$  K) kaum Reaktionen ablaufen, bei einer höheren Temperatur (z.B.

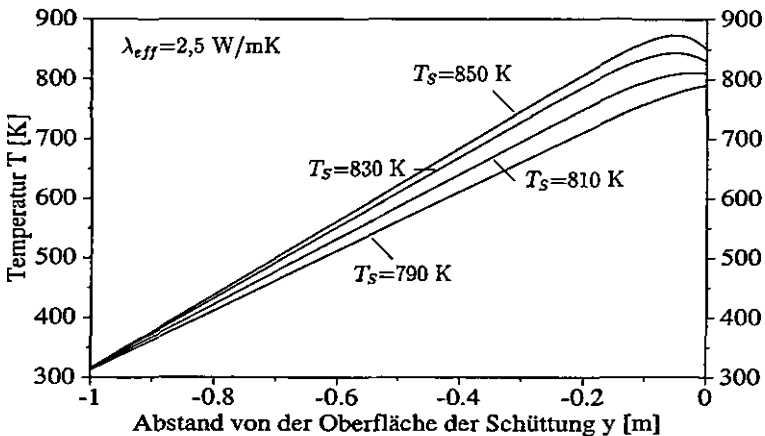


Abbildung 4.6: Temperatur in Abhängigkeit des Abstands von der Oberfläche der Schüttung für verschiedene Oberflächentemperaturen  $T_S$  ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ )

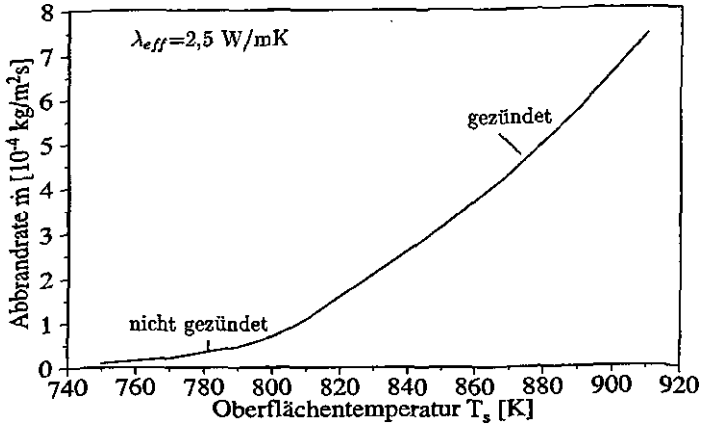


Abbildung 4.7: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$  ( $a=300 \text{ 1/s}$ ,  $Y_{O_2,e}=0,5$ )

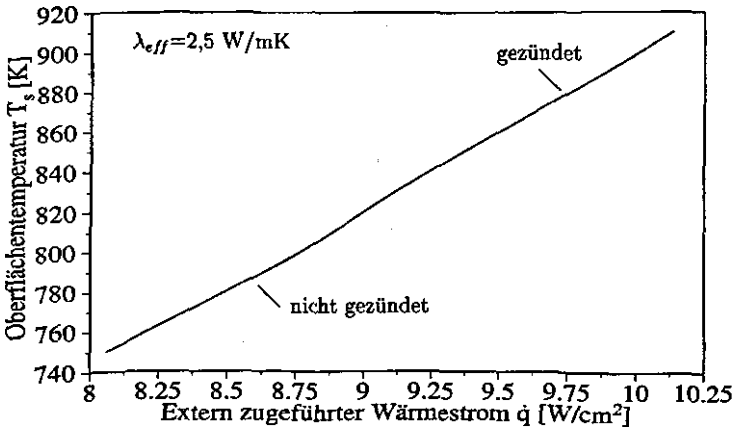


Abbildung 4.8: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  ( $a=300 \text{ 1/s}$ ,  $Y_{O_2,e}=0,5$ )

$T_S=850$  K) aber ein deutliches Temperaturmaximum auf gezündete Reaktionen hinweist, muß der Zündpunkt irgendwo in dem Temperaturintervall zwischen diesen Werten liegen. Die Angabe ist nicht mehr so offensichtlich wie in dem Fall der S-förmigen Verläufe und aufgrund der stetigen Kurven auch nicht mehr so sinnvoll. In der Literatur findet man sehr viele verschiedene Zündkriterien, die in theoretischen und experimentellen Untersuchungen zum Einsatz kommen [90, 116]. Dazu zählen z.B. das Überschreiten einer kritischen Temperatur, ein Wendepunkt in der Temperatur-Zeit-Kurve eines bestimmten Ortes im Verbrennungssystem, das weitere Ansteigen der Temperatur nach Wegnahme der Energiequelle und viele andere Kriterien.

Ein naheliegendes Kriterium in dem hier vorliegenden Fall ist die Benutzung des Zündkriteriums nach Van't Hoff [75, 117]. Diese Bedingung besagt, daß ein System in der Nähe einer heißen Oberfläche zündet, wenn der Temperaturgradient normal zur Oberfläche Null wird. Dieses für die Zündung von vorgemischten Gasen entwickelte Kriterium kann zur Beschreibung der heterogenen Zündung in der Schüttung benutzt werden. Die Oberflächentemperatur, bei der der Gradient des Temperaturverlaufs in der Schüttung an der Oberfläche Null wird, ist demnach die Zündtemperatur. So läßt sich auch für den Fall, der in den Abbildungen 4.6-4.8 dargestellt ist, eine Zündtemperatur definieren. Für den größeren Wert von  $\lambda_{eff}$  ergibt sich die höhere Zündtemperatur (vgl. Abb. 4.3 und 4.6).

## 4.2 Parametervariationen

### Effektive Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{eff}$

Durch die zwei vorgestellten Rechnungen, in denen eine unterschiedliche effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung benutzt wurde, ist deutlich geworden, daß  $\lambda_{eff}$  einen sehr großen Einfluß auf das Zünd- und Löschverhalten der heterogenen Reaktionen hat. Allerdings ist es schwer, theoretisch einen „exakten“ Wert für die Wärmeleitfähigkeit einer Schüttung zu ermitteln. Der Wert muß sich zwischen zwei Grenzfällen befinden, die durch die parallele bzw. serielle Anordnung der zwei Phasen gegeben sind (Abb. 4.9) [97].

Für die parallele Anordnung ergibt sich die effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung zu  $\lambda_{eff} = \phi\lambda_g + (1 - \phi)\lambda_p$ , für die serielle Anordnung beträgt der Wert  $\lambda_{eff} = 1 / \left( \frac{\phi}{\lambda_g} + \frac{1-\phi}{\lambda_p} \right)$ . Für Zahlenwerte von  $\lambda_g=0,0256$  W/mK und  $\lambda_p=4,65$  W/mK, die dem in der vorliegenden Arbeit verwendeten Fall von Luft (0,026) bzw. Kohlenstoff (5, wobei die Angaben in der Literatur stark schwanken) gut entsprechen, zeigt Abbildung 4.10 den Verlauf der Grenzwerte für  $\lambda_{eff}$  in Abhängigkeit der Porosität sowie den Bereich der experimentellen Werte. Diese liegen näher am Grenzwert der seriellen Anordnung.

Da der Wert der effektiven Wärmeleitfähigkeit in einem großen Bereich streuen kann, andererseits aber einen großen Einfluß auf die Zünd- und Löschcharakteristik der heterogenen Reaktionen hat, wurde dieser Parameter in den Rechnungen variiert. Die sich ergebenden Abhängigkeiten der Maximaltemperatur in der Schüttung in bezug auf den externen Wärmestrom  $\dot{q}$  sind in Abbildung 4.11 dargestellt. (Die maximale Temperatur liegt dabei für den nicht-gezündeten Fall an der Oberfläche, für den gezündeten Fall im Inneren der Schüttung). Je größer die Wärmeleitfähigkeit ist, umso höher ist die Zündtem-

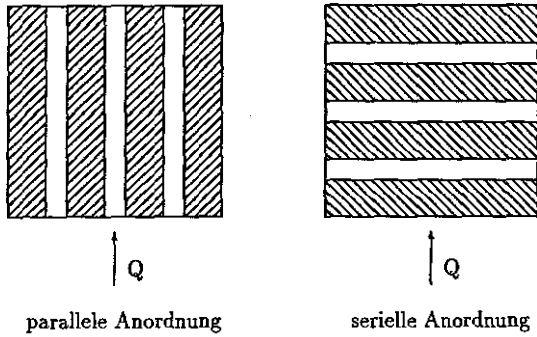


Abbildung 4.9: Grenzfälle für Wärmeleitungsvorgänge

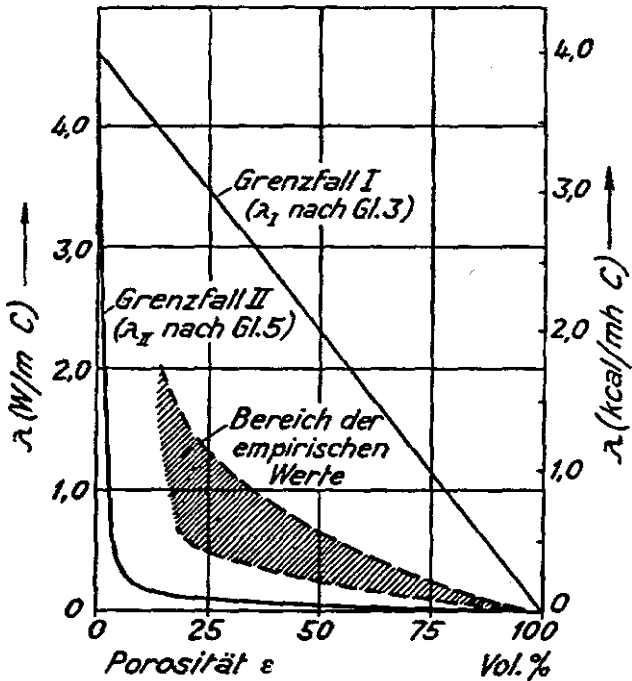


Abbildung 4.10: Wärmeleitung inhomogener Körper  
(aus Grassmann [97], S.369)

peratur und umso schwächer ausgeprägt ist der S-förmige Verlauf der Kurven. Für höhere Werte von  $\lambda_{eff}$  findet man, wie bereits diskutiert, keine S-Form und muß den Zündpunkt gegebenenfalls mit Hilfe anderer Kriterien bestimmen. Für niedrigere Werte von  $\lambda_{eff}$ , wie sie laut Abbildung 4.10 realistisch sind, findet man ein unstetiges Zünd- und Löschverhalten sowie Mehrfachlösungen (zwei stabile Lösungen) für einen bestimmten Bereich des Wärmestroms  $\dot{q}$ .

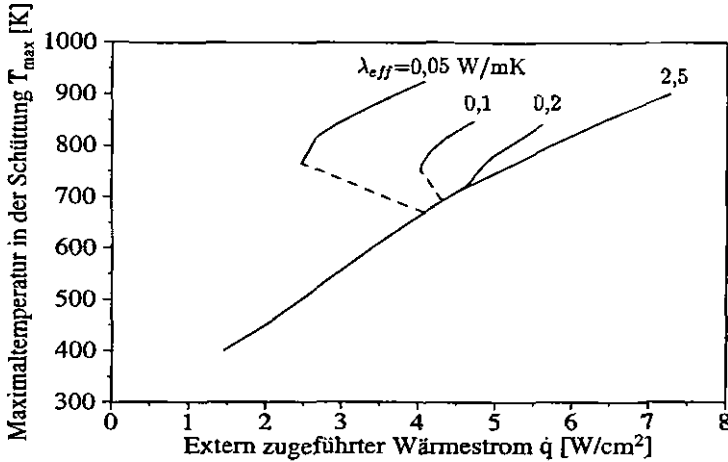


Abbildung 4.11: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte der effektiven Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{eff}$  der Schüttung ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $L=1$  m,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

Auf das Zünd- und Löschverhalten hat nicht nur die Wärmeleitfähigkeit der Schüttung einen Einfluß, sondern auch viele andere Größen, die das System beschreiben. Der Einfluß der Schüttungslänge  $L$ , des Sauerstoffgehalts der Anströmung  $Y_{O_2,e}$ , des Staupunktgradienten  $a$  (und damit der Strömungsgeschwindigkeit der Anströmung), der Schüttungsporosität  $\phi$  und des Partikelradius  $r_p$  ist in den Abbildungen 4.12-4.16 dargestellt.

### Schüttungslänge $L$

Abbildung 4.12 zeigt die Maximaltemperatur in der Schüttung über dem externen Wärmestrom  $\dot{q}$  für verschiedene Schüttungslängen  $L$ . Je länger die Schüttung ist, umso niedriger liegt die Zündtemperatur. Außerdem ergeben sich Mehrfachlösungen für diesen Fall. Damit hat die Länge der Schüttung eine Auswirkung umgekehrt proportional zur Wärmeleitfähigkeit. Ein kleineres  $\lambda_{eff}$  und ein größeres  $L$  führen dazu, daß weniger Wärme aus der Reaktionszone abgeführt wird – damit sinkt die Zündtemperatur.

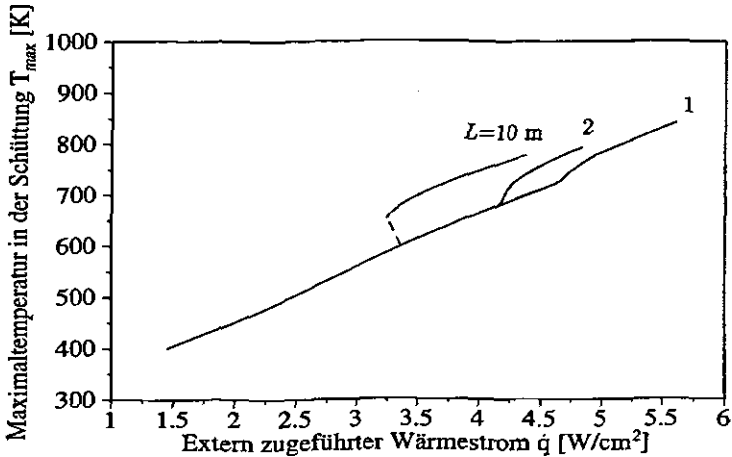


Abbildung 4.12: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte der Schüttungslänge  $L$   
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{eff}=0,2$  W/mK,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

### Sauerstoffgehalt der Anströmung $Y_{O_2,e}$

Der für die Oxidation nötige Sauerstoff muß durch die Anströmung herantransportiert werden und in die Schüttung diffundieren. Je höher der Sauerstoffgehalt  $Y_{O_2,e}$  der Anströmung ist, umso niedriger liegt der Zündpunkt (Abb. 4.13). Einen starken Einfluß hat  $Y_{O_2,e}$  auf den Löschpunkt – der externe Wärmestrom  $\dot{q}$  muß z.B. bei reiner Sauerstoffanströmung zwecks Auslöschung der Reaktionen wesentlich unter den Wert gesenkt werden, der bei  $Y_{O_2,e}=0,5$  zum Löschen ausreicht.

Da der Sauerstoff in die Schüttung diffundieren muß, wird auch der Diffusionskoeffizient eine Rolle bezüglich des Abbrandverhaltens spielen. Da dieser Wert aber nicht, wie die anderen hier variierten Parameter, von außen beeinflusst werden kann, wird hier keine Variation diskutiert.

### Staupunktgradient $\alpha$

Abbildung 4.14 zeigt, daß der Staupunktgradient  $\alpha$  keinen Einfluß auf die Zünd- und Löschtemperatur hat. Er hat aber einen Einfluß auf den notwendigen, externen Wärmestrom. Dies bestätigt, daß die heterogene Zündung im reaktionskontrollierten Bereich stattfindet. Es ist genügend Sauerstoff vorhanden, die Temperatur muß lediglich auf das für die Zündung nötige Niveau gebracht werden. Dabei spielt die durch die Strömung herantransportierte Sauerstoffmenge keine Rolle. Ein höherer Staupunktgradient führt zu

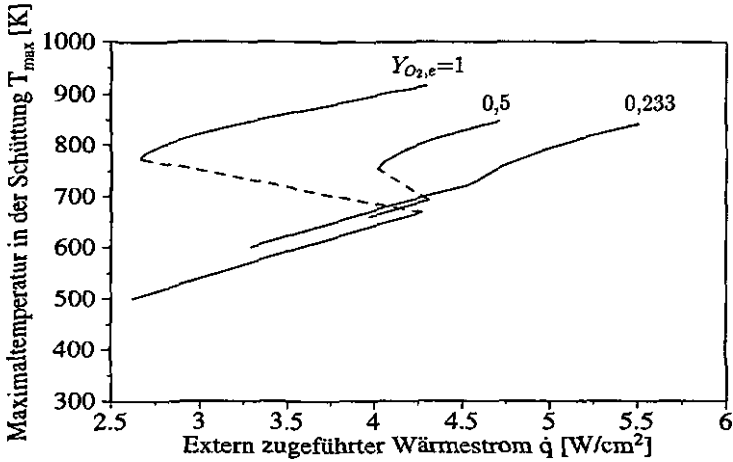


Abbildung 4.13: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Sauerstoffgehalts der Anströmung  $Y_{\text{O}_2,e}$  ( $a=300$  1/s,  $\lambda_{\text{eff}}=0,1$  W/mK,  $L=1$  m,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

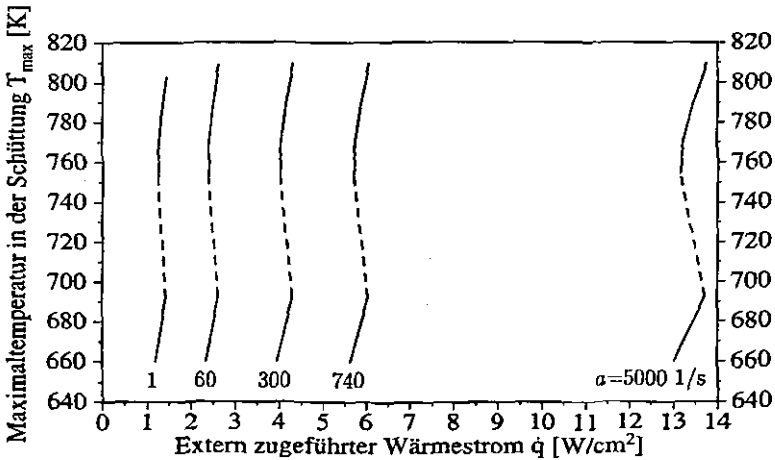


Abbildung 4.14: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Staupunktgradienten  $\alpha$  der Anströmung ( $Y_{\text{O}_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{\text{eff}}=0,1$  W/mK,  $L=1$  m,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

einer stärkeren Kühlung der Oberfläche der Schüttung. Daher muß ein größerer Wärmestrom zugeführt werden, um eine bestimmte Oberflächentemperatur aufrecht zu erhalten.

### Schüttungsporosität $\phi$ , Partikelradius $r_p$

Eine Zündung der heterogenen Reaktionen kann umso leichter erfolgen, je größer die der Reaktion zur Verfügung stehende Oberfläche ist. Bei einem porösen Material bzw. einer Schüttung ist dabei im wesentlichen die innere Oberfläche entscheidend, da die Zündung aufgrund der Wärmefreisetzung und -ansammlung in der Regel im Inneren stattfinden wird. Für die innere Oberfläche sind die Schüttungsporosität  $\phi$  und der Partikelradius  $r_p$  maßgeblich. Ein kleineres  $\phi$  und ein kleineres  $r_p$  führen zu einer größeren Oberfläche, demzufolge sollte die Zündtemperatur niedriger sein als für größere Werte dieser beiden Parameter. Dieser Sachverhalt wird in den Abbildungen 4.15 und 4.16 bestätigt.

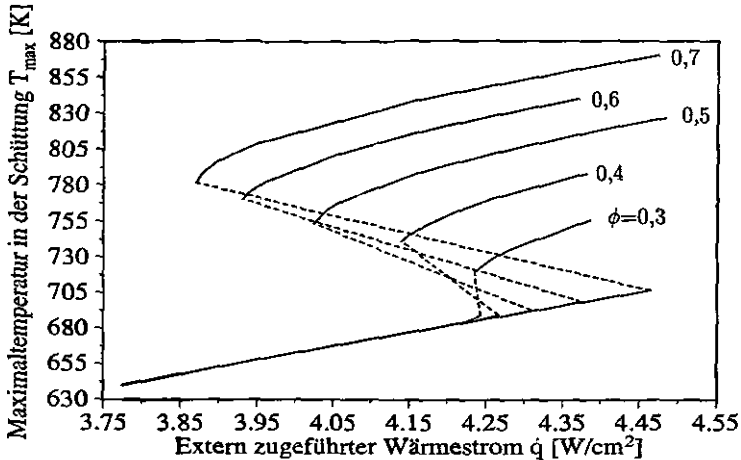


Abbildung 4.15: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte der Porosität der Schüttung  $\phi$   
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $L=1$  m,  $r_p=1$  mm)

In den Abbildungen 4.11-4.16 wurde der Einfluß von verschiedenen Parametern auf die Zünd- und Löscharakteristiken der heterogenen Reaktionen beim Abbrand einer angeströmten Schüttung dargestellt. Die Wärmeleitfähigkeit der Schüttung, deren Wert stark streuen kann, ist aufgrund ihres Einflusses auf den Energietransport besonders wichtig. Aber auch die anderen Parameter haben einen starken Effekt. Es wurde gezeigt, daß sich unter Umständen mehrere stabile Lösungen ergeben können – welche der Lösungen sich einstellt, ist von den Anfangsbedingungen abhängig.

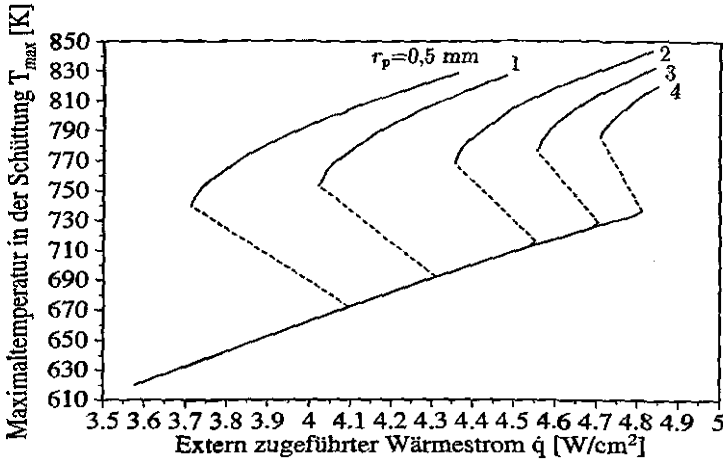


Abbildung 4.16: Maximaltemperatur in der Schüttung in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Partikelradius  $r_p$   
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $L=1$  m,  $\phi=0,5$ )

Zur weiteren theoretischen Untersuchung und Absicherung der berechneten Ergebnisse werden die Zündtemperaturen im folgenden Abschnitt mit Werten verglichen, die mit der Theorie von Frank-Kamenetskii berechnet werden können.

### 4.3 Berechnung der Zündung nach Frank-Kamenetskii

Die Theorie der thermischen Zündung besagt, daß ein chemisch reagierendes System, welches einerseits Wärme produziert und andererseits Wärme an die Umgebung abgibt, nur unter bestimmten Umständen einen stationären (nicht-gezündeten) Zustand annehmen kann. Oberhalb eines kritischen Wertes der Aufheizung ist keine Stationarität möglich, und es kommt zu einer thermischen Zündung oder Explosion [118, 119]. Die Grundlagen der Theorie zur Erklärung und Berechnung dieser Effekte sind in [17, 118-121] dargestellt. Sie wurden ursprünglich für ein gleichmäßig erwärmtes System aufgestellt und von verschiedenen Autoren für andere Randbedingungen erweitert. Thomas et al. [122] stellen eine (eindimensionale) Lösung für eine reagierende „Platte“ vor, deren eine Oberfläche auf einer konstanten hohen Temperatur gehalten wird während die andere Oberfläche sich zur kälteren Umgebung hin abkühlen kann. Dieser Fall kommt dem Fall der in der vorliegenden Arbeit betrachteten Schüttung mit ablaufenden heterogenen Reaktionen sehr nahe. Die Vorgehensweise bei den Überlegungen von Frank-Kamenetskii wird im folgenden skizziert, das Ergebnis wird bezüglich der Aussage für die heterogene Zündung diskutiert und mit den Ergebnissen des Kapitels 4.2 verglichen.

Die Theorie zur thermischen Zündung wurde ursprünglich für Systeme von vorgemischtem Brennstoff und Oxidator aufgestellt. Diesem Fall kommen poröse Materialien bzw. Schüttungen aufgrund ihrer Porosität sehr nahe. Als Zündung wird die obere Grenze des stationären, nicht-gezündeten Zustands angesehen. Dabei werden die folgenden Voraussetzungen gemacht: (1) Es läuft eine exotherme Reaktion ab, deren Rate mit einem Arrhenius-Ansatz berechnet wird. (2) Der Verbrauch von Brennstoff und Oxidator wird vernachlässigt; die Reaktionsrate hängt nur von der Temperatur ab. (3) Wärmeleitung ist der einzige Energietransportmechanismus in dem betrachteten System. (4) Die Wärmeleitfähigkeit ist keine Funktion der Temperatur. Ausgehend von der eindimensionalen Energiegleichung, die in ihrer stationären Form angesetzt wird und nur den Quellterm und den Wärmeleitungsterm berücksichtigt, löst Frank-Kamenetskii die dimensionslose Gleichung  $\frac{d^2\theta}{dz^2} = -\delta e^\theta$ .

Die Lösung dieser Gleichung ergibt ein Temperaturprofil für einen stationären Zustand. Lösungen existieren allerdings nur für Werte  $\delta < \delta_c$ . Dies bedeutet physikalisch, daß für  $\delta > \delta_c$  keine stationäre Lösung existiert, das Material heizt sich weiter auf, und es kommt zur Zündung.

Thomas et al. [122] geben für die Randbedingungen, die auch bei der Schüttung vorliegen, eine Gleichung an, mit der  $\delta_c$  iterativ bestimmt werden kann.  $\delta_c$  kann auch in Abhängigkeit der Temperaturen an den Oberflächen der Platte aus einer Graphik in [122] abgelesen werden.

Übertragen auf das Problem der Schüttung haben die skizzierten Überlegungen folgende Bedeutung: Man geht von der Energiegleichung (3.30) aus, wobei nur der Wärmeleitungsterm und der Quellterm berücksichtigt werden dürfen:

$$\frac{\partial^2 T}{\partial y^2} = \frac{\sum_{i, \text{ges}} h_{i,0} \sum_{j, \text{het}} w_{ij}}{\lambda_{\text{eff}}} \quad (4.1)$$

Eine dimensionslose Formulierung analog zu Frank-Kamenetskii führt auf den Wert von  $\delta$  als

$$\delta = h_{CO_2} \frac{3(1-\phi)}{\tau_p} M_{CO_2} k_{0,I} \frac{\rho_{g,w} Y_{O_2,e} \left(\frac{L}{2}\right)^2 E}{M_{O_2} \lambda_{\text{eff}} RT_w^2} \exp\left(-\frac{E}{RT_w}\right) \quad (4.2)$$

Dabei wurde die Voraussetzung gemacht, daß nur die Reaktion I abläuft ( $C + O_2 \rightarrow CO_2$ ) und in der Schüttung überall der Sauerstoffgehalt  $Y_{O_2,e}$  vorliegt. Trotz der kleinen Fehler wie Vernachlässigung der Konvektion, Benutzung der Gasdichte an der Oberfläche  $\rho_{g,w}$  (statt einer lokal veränderlichen Dichte) und Vernachlässigung des Verbrauchs von Sauerstoff ergeben sich bei der Benutzung des oben angegebenen  $\delta$  und beim Ablesen des kritischen  $\delta_c$  aus einer Abbildung in [122] Zündtemperaturen, die sich nur um wenige Kelvin von den Lösungen unterscheiden, die in den Abbildungen 4.11-4.16 vorgestellt wurden. Diese Übereinstimmung ist eine Bestätigung der berechneten Effekte und Verläufe.

Wichtiger noch als die zahlenmäßige Übereinstimmung bei den Zündtemperaturen ist die Möglichkeit, mit Hilfe der Gleichung für  $\delta$  die Einflußgrößen zu diskutieren. Da die mathematische Forderung lautet, daß  $\delta$  einen Grenzwert  $\delta_c$  nicht überschreiten darf, können die

Auswirkungen von Parameteränderungen auf die Zündtemperatur schnell erkannt werden. Eine Erhöhung von  $\lambda_{eff}$  führt zu einem kleineren  $\delta$  und damit zu einer höheren Zündtemperatur. Der umgekehrte Effekt ist für die Schüttungslänge  $L$  festzustellen – eine Vergrößerung führt zu größerem  $\delta$  und zu niedrigerer Zündtemperatur. Entsprechend werden auch für die Größen  $Y_{O_2,e}$ ,  $\phi$  und  $r_p$  die Einflüsse bestätigt, die in den Abbildungen 4.13, 4.15 und 4.16 diskutiert wurden. Aufgrund der Voraussetzung von Frank-Kamenetskii, daß die Reaktionsrate nur von der Temperatur abhängt, steht in der obigen Gleichung  $Y_{O_2,e}$ . Der Sauerstofftransport durch die Anströmung und der Einfluß des Staupunktgradienten  $a$  kommen in dieser im wesentlichen analytischen Betrachtung nicht vor. Die Annahme, daß dieser Einfluß vernachlässigt werden kann, trifft beim vorliegenden Fall zu, denn in Abbildung 4.14 ist zu sehen, daß der Wert von  $a$  keine Auswirkung auf die Zündtemperatur, sondern nur auf die nötige Wärmezufuhr zur Oberfläche hat.

Somit ist es möglich, mit einer Betrachtung der thermischen Zündung analog zu dem Vorgehen von Frank-Kamenetskii die Oberflächentemperatur der Schüttung zu berechnen, bei der die heterogenen Reaktionen zünden. Zusätzlich ist es möglich, die Auswirkung von verschiedenen Parametern auf die Zündtemperatur zu bestimmen.

#### 4.4 Einfluß der Randbedingungen am geschlossenen Ende der Schüttung

Abschließend soll betreffend der Zündung der heterogenen Reaktionen der Einfluß der Randbedingungen am geschlossenen Ende der Schüttung untersucht werden. Alle bisher vorgestellten Ergebnisse wurden für den Fall einer fest vorgegebenen Temperatur, die der Umgebungstemperatur entsprach, erzeugt. Diskutiert werden sollen hier die Verwendung eines Wärmeübergangsgesetzes und die Verwendung einer adiabatischen Randbedingung.

In einem Experiment wäre vermutlich die Temperatur am geschlossenen Ende der Schüttung nicht fest vorgegeben, sondern die Schüttung würde dort im Wärmeaustausch mit der Umgebung stehen. Daher könnte sich die Wandtemperatur über die Umgebungstemperatur hinaus erhöhen. Der Wärmeübergangskoeffizient  $\alpha$  zwischen Umgebung und Wand müßte aus einem Kennzahlgesetz bestimmt werden. Er liegt für natürliche Konvektion in der Größenordnung von 3-20 W/m<sup>2</sup>K.

Abbildung 4.17 zeigt Temperaturprofile in der Schüttung für immer gleiche Oberflächentemperatur bei  $y=0$ , aber unterschiedliche Werte von  $\alpha$  am linken, geschlossenen Ende. (Zusätzlich wurde an diesem Ende ein Strahlungsaustausch mit der Umgebung berücksichtigt.) Es ist zu sehen, daß sich je nach Wert von  $\alpha$  eine gezündete bzw. eine nicht gezündete Lösung einstellt. Je größer  $\alpha$  ist, umso näher liegt die Temperatur am linken Ende an der Umgebungstemperatur, weil ein besserer Wärmeübergang existiert. Demzufolge führt ein kleineres  $\alpha$  zu einer schlechteren Wärmeableitung aus der Schüttung und damit zu einer leichteren Zündung. Andererseits ist aber auch zu sehen, daß sich die ungezündeten Profile für verschiedene Werte des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  nicht stark unterscheiden. Gleiches gilt für die gezündeten Temperaturprofile, was auch in Abbildung 4.18 noch einmal bestätigt wird. Durch die Verwendung eines Wärmeübergangsgesetzes statt einer konstanten Temperatur am geschlossenen Ende der Schüttung ergeben sich

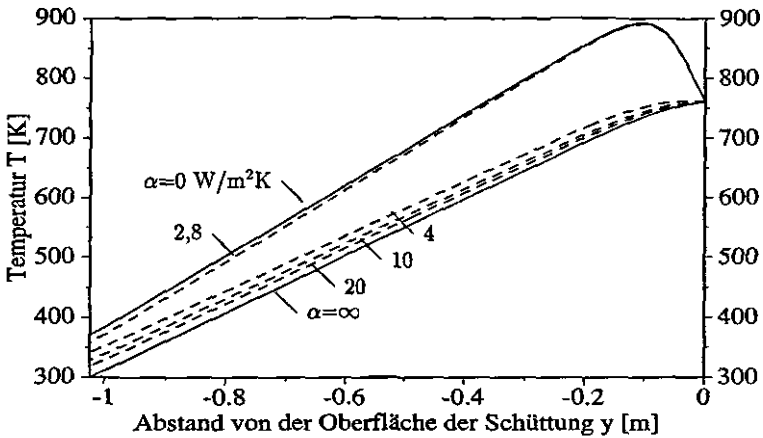


Abbildung 4.17: Temperaturprofile in der Schüttung für eine konstante Oberflächentemperatur  $T_s$ ; Einfluß des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  am linken Ende auf die Zündung

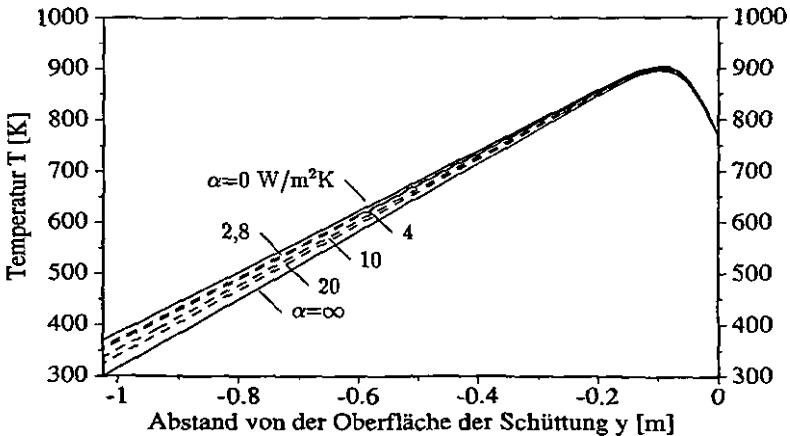


Abbildung 4.18: Temperaturprofile in der Schüttung für eine konstante Oberflächentemperatur  $T_s$ ; Einfluß des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  am linken Ende auf die gezündete Lösung

also qualitativ keine anderen Lösungen oder Effekte, lediglich die Zünd- und Löschpunkte verschieben sich etwas. Da in dieser Arbeit aber kein quantitativer Vergleich der Berechnungen mit experimentellen Daten erfolgt, ist die Benutzung einer konstanten Temperatur als Randbedingung ausreichend.

Einen Grenzfall stellt die Verwendung einer adiabatischen Randbedingung am geschlossenen Ende dar. In den Abbildungen 4.19 und 4.20 sind Temperaturprofile für gezündete heterogene Reaktionen dargestellt. Wenn keine oder nur sehr schwache Reaktionen im Inneren ablaufen, heizt sich die Schüttung komplett auf den Wert der Oberflächentemperatur auf, und es kann sogar zu einem leichten Maximum der Temperatur am geschlossenen Ende kommen (ohne Abbildung). Wenn die heterogenen Reaktionen einschließlich der Boudouard-Reaktion ( $C + CO_2 \rightarrow 2CO$ ) gezündet sind, entsteht ein lokales Maximum der Temperatur im Inneren der Schüttung, da die Boudouard-Reaktion endotherm ist und demzufolge zu einem Absinken der Temperatur führt. Es stellt sich somit ein Verlauf, wie er in Abbildung 4.19 dargestellt ist, ein. Der Einfluß der Boudouard-Reaktion wird besonders deutlich, wenn die Ergebnisse für den Temperatur- und den  $CO_2$ -Verlauf aus Abbildung 4.19 mit den Ergebnissen in Abbildung 4.20 verglichen werden, die denselben Fall unter ausschließlicher Berücksichtigung der Reaktionen I und II wiedergeben.

Alle Ergebnisse zur Zündung der homogenen Reaktion in der Gasphase, die im folgenden Kapitel vorgestellt werden, sind mit einer konstanten Temperatur am geschlossenen Ende der Schüttung als Randbedingung berechnet worden.

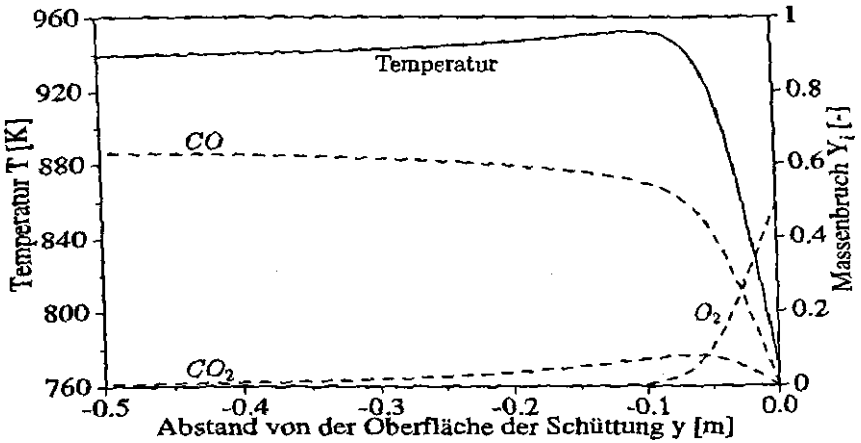


Abbildung 4.19: Verlauf der Temperatur und der Massenbrüche von  $O_2$ ,  $CO$  und  $CO_2$  in der Schüttung bei Verwendung einer adiabaten Randbedingung am linken Ende der Schüttung (unter Berücksichtigung der Reaktionen I-III)

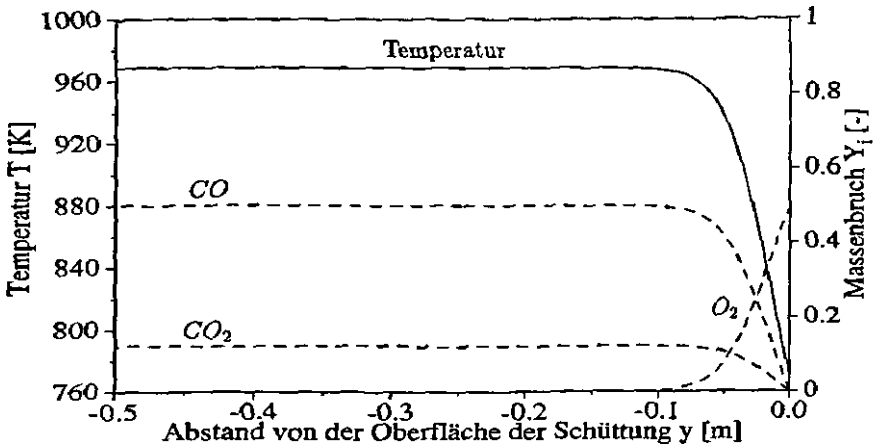


Abbildung 4.20: Verlauf der Temperatur und der Massenbrüche von  $O_2$ ,  $CO$  und  $CO_2$  in der Schüttung bei Verwendung einer adiabaten Randbedingung am linken Ende der Schüttung (unter Berücksichtigung der Reaktionen I und II)

## 5 Heterogene und homogene Zündung

### 5.1 Charakteristische Effekte

In diesem Kapitel wird die Zündung der homogenen Reaktion betrachtet. Wenn die heterogenen Reaktionen im Inneren der Schüttung zünden, entsteht ein Temperaturmaximum im Inneren, das bei Erhöhung der Oberflächentemperatur immer mehr zur Oberfläche wandert und schließlich an der Oberfläche selbst liegt. Dies liegt daran, daß der Oxidator nicht mehr weit in die Schüttung eindringen kann, sondern an bzw. in der Nähe der Oberfläche verbraucht wird. Bei weiterer Erhöhung der Oberflächentemperatur zündet zusätzlich die homogene Reaktion in der Gasphase. Abbildung 5.1 zeigt typische Verläufe der Temperatur und der Massenbrüche von Sauerstoff, Kohlenmonoxid und Kohlendioxid für den Fall einer von der Oberfläche abgelösten Flamme. Es gibt ein Temperaturmaximum in der Grenzschicht der Anströmung, das Maximum der Temperatur in der Schüttung liegt an ihrer Oberfläche.

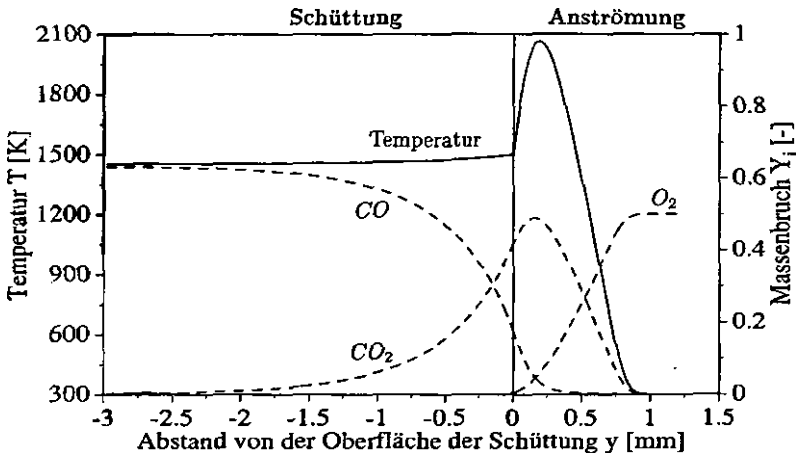


Abbildung 5.1: Typische Profile für den Fall einer gezündeten homogenen Reaktion

Wie in Abbildung 5.1 zu sehen ist, gelangt fast kein Sauerstoff bis zu der Schüttung, da er in der Flamme ( $CO$ -Oxidation) verbraucht wird. Durch diese Reaktion wird  $CO_2$  erzeugt, welches über die Boudouard-Reaktion ( $C + CO_2 \rightarrow 2CO$ ) den Kohlenstoff vergast (daher der Verbrauch von  $CO_2$  in der Schüttung, siehe Abb. 5.1). Während bei niedrigeren Temperaturen und gezündeten heterogenen Reaktionen der Abbrand des Kohlenstoffs im wesentlichen durch die Oxidation durch  $O_2$  erfolgt, läuft er bei höheren Temperaturen und abgelöster Flamme über die Boudouard-Reaktion.

Der hier vorliegende Fall, daß eine heterogene und eine homogene Reaktionszone existieren, wurde bereits durch Abbildung 4.1 qualitativ besprochen. Abbildung 5.2 zeigt den

Sachverhalt noch einmal, indem der Verlauf der Reaktionsraten der Reaktionen in der Schüttung und in der Anströmung dargestellt wird. In der Schüttung können prinzipiell drei Reaktionen ablaufen, wobei zu sehen ist, daß die Reaktion III ( $C + CO_2 \rightarrow 2CO$ ), von einer dünnen Zone an der Oberfläche abgesehen, die wesentliche Reaktion ist. Die Reaktion II ( $2C + O_2 \rightarrow 2CO$ ) läuft nur in geringem Maße ab, weil kaum Sauerstoff zur Verfügung steht. Die Reaktion I ( $C + O_2 \rightarrow CO_2$ ) ist bei Temperaturen oberhalb 1000 K vernachlässigbar gegenüber der Reaktion II, ihre Reaktionsrate ist daher in der Abbildung kaum zu erkennen. Das Maximum der Reaktionsrate der heterogenen Reaktionen liegt an der Oberfläche der Schüttung. In der Anströmung wird nur eine Reaktion zugelassen, es ist dies die Oxidation von Kohlenmonoxid ( $2CO + O_2 \rightarrow 2CO_2$ ). Die Reaktionsrate hat ein Maximum in der Grenzschicht, vor der Schüttung, und führt zu einem von der Oberfläche abgelösten Temperaturmaximum.

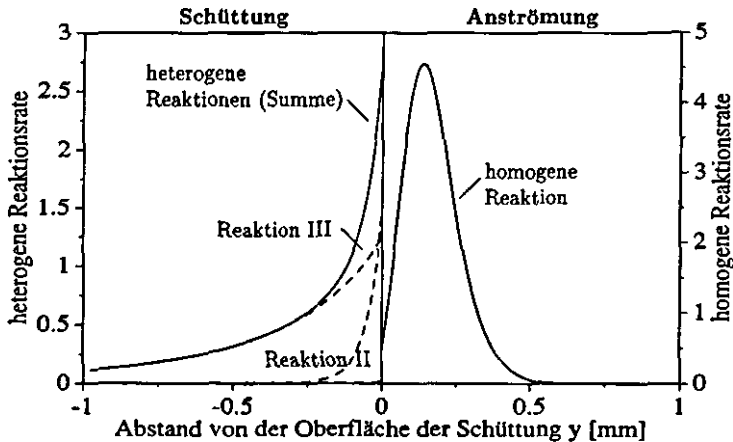


Abbildung 5.2: Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen in der Schüttung und der homogenen Reaktion in der Anströmung für den Fall aus Abbildung 5.1

Nach dieser Beschreibung typischer, zu erwartender Effekte und Zusammenhänge sollen die Ergebnisse jetzt im Detail dargestellt werden.

Die Verschiebung des Reaktionsmaximums aus dem Inneren der Schüttung an die Oberfläche, das Zünden der homogenen Reaktion und das Umschalten der heterogenen Reaktion von der Oxidation durch  $O_2$  auf die Vergasung durch  $CO_2$  führen auf eine Abhängigkeit der Abbrandrate  $\dot{m}$  von der Oberflächentemperatur  $T_s$ , wie sie in Abbildung 5.3 dargestellt ist. Darin ist die Gesamtabbrandrate zu sehen, die zusätzlich in die zwei Anteile des Abbrandes an der Stirnfläche der Schüttung und des Abbrandes an der inneren Oberfläche der Schüttung aufgeteilt ist.

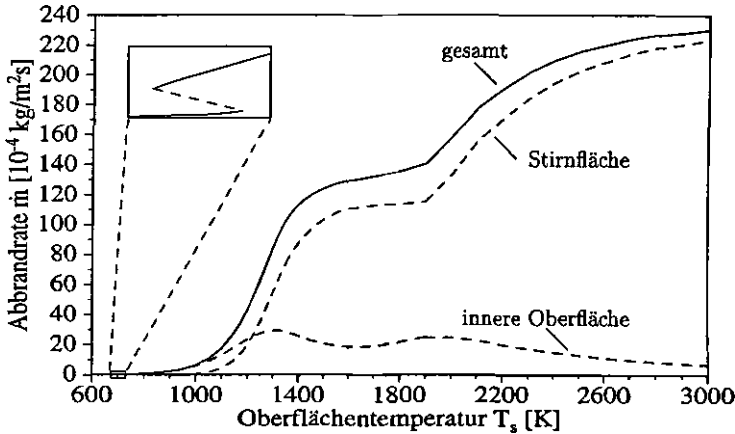


Abbildung 5.3: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_S$   
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $\phi=0,5$ ,  
 $r_p=1$  mm)

Wird zunächst der Gesamtabbrand betrachtet, so steigt dieser mit zunehmender Oberflächentemperatur. Wie in Kapitel 4 gezeigt wurde, kann durch die Zündung der heterogenen Reaktionen ein Sprung im Verlauf entstehen. Dies ist aufgrund des Maßstabs ( $\dot{m}(T_S \approx 700 \text{ K}) \ll \dot{m}(T_S \approx 3000 \text{ K})$ ) nur in dem vergrößerten Ausschnitt zu erkennen. Im Bereich um  $T_S=1600$  K kommt es zu einer Plateaubildung für  $\dot{m}$ . Dies liegt daran, daß in diesem Temperaturbereich die homogene Reaktion einsetzt und den heterogenen Reaktionen dadurch weniger Sauerstoff zur Verfügung steht. Andererseits ist die Reaktionsrate der Boudouard-Reaktion III noch nicht hoch genug, um den Rückgang der Reaktionen I und II auszugleichen – es kommt zu einer Stagnation (oder sogar zu einer Abnahme) von  $\dot{m}$  trotz steigender Temperatur  $T_S$ . Erst bei weiter steigender Oberflächentemperatur läuft die Boudouard-Reaktion stärker ab und  $\dot{m}$  steigt wieder. Für hohe Temperaturen erreicht die Abbrandrate einen transportkontrollierten Grenzwert.

Die Zündung der heterogenen Reaktionen findet in der Regel im Inneren der Schüttung statt, dadurch überwiegt bei niedrigen Temperaturen der Abbrand an der inneren Oberfläche. Mit steigender Temperatur  $T_S$  verschiebt sich die Reaktionszone zur Oberfläche, der Stirnflächenabbrand nimmt zu. Bei höheren Temperaturen dominiert der Stirnflächenabbrand und bestimmt das Verhalten der Gesamtabbrandrate. Der innere Abbrand hat zwei lokale Maxima bevor er für sehr hohe Temperaturen gegen Null strebt. Das erste Maximum entsteht durch das Ansteigen der Reaktionsrate mit steigender Temperatur einerseits und den Verbrauch des Sauerstoffs durch die homogene Reaktion bzw. an der Stirnfläche andererseits. Hierdurch geht  $\dot{m}_{innen}$  etwas zurück. Zu dem zweiten Maximum kommt es, weil die Boudouard-Reaktion im Inneren mit steigender Temperatur schneller abläuft bis immer weniger  $CO_2$  zur Verfügung steht und  $\dot{m}_{innen}$  wieder fällt. Das Kohlendioxid wird

dann bereits zu einem großen Teil an der Stirnfläche verbraucht und diffundiert nur noch in geringem Maße in die Schüttung.

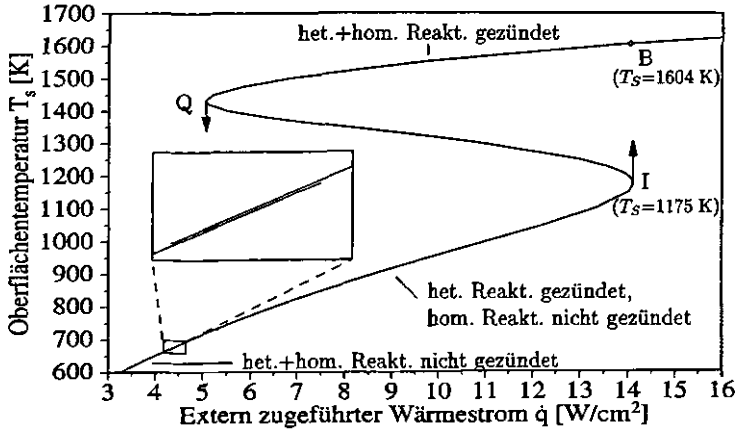


Abbildung 5.4: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$   
 $(\alpha=300 \text{ l/s}, Y_{O_2,e}=0,5, Y_{H_2O,e}=0,01, \lambda_{eff}=0,1 \text{ W/mK}, \phi=0,5, r_p=1 \text{ mm})$

Obwohl in einem gewissen Temperaturbereich die homogenen Reaktionen zünden und die Flamme von der Oberfläche ablösen kann, ist der Verlauf der Abbrandrate  $\dot{m}$  in dem gesamten Temperaturbereich stetig. Der Grund wird deutlich, wenn die Zünd- und Löscharakteristik in Abbildung 5.4 betrachtet wird. Die Abbildung zeigt die Oberflächentemperatur  $T_s$  aufgetragen über einem externen Wärmestrom  $\dot{q}$  zur Oberfläche. Das sprungartige Verhalten dieses Verlaufs aufgrund der heterogenen Zündung und die daraus entstehenden Mehrfachlösungen sind aufgrund des Maßstabs in der Gesamtansicht nicht zu erkennen. Bei der Deutung der Zündung der homogenen Reaktion macht es einen großen Unterschied, ob die Steuerung des Prozesses über eine Vorgabe von  $\dot{q}$  oder über eine Vorgabe von  $T_s$  erfolgt. Bei einer Vorgabe von  $T_s$  gibt es zu jeder Oberflächentemperatur einen eindeutigen Wert von  $\dot{q}$ . Die homogenen Reaktionen entwickeln sich kontinuierlich, es kommt zur Ablösung der Flamme von der Oberfläche, aber diese Effekte führen nicht zu einer sprunghaften Änderung im Verlauf der stationären Lösung. Anders verhält es sich bei einer Vorgabe von  $\dot{q}$ . Bis zum Punkt I steigt die Temperatur kontinuierlich mit steigendem  $\dot{q}$ , bei einer weiteren Erhöhung des Wärmestroms kommt es zur Zündung der homogenen Reaktion und die Oberflächentemperatur springt auf den oberen Ast. Gleichzeitig entsteht ein Temperaturmaximum vor der Oberfläche, siehe Abbildung 5.5. Entsprechend erkennt man den Löschpunkt Q in Abbildung 5.4, bei dem die umgekehrten Effekte im Vergleich zum Zünden auftreten. Hierzu werden deshalb keine speziellen weiteren Kurven gezeigt.

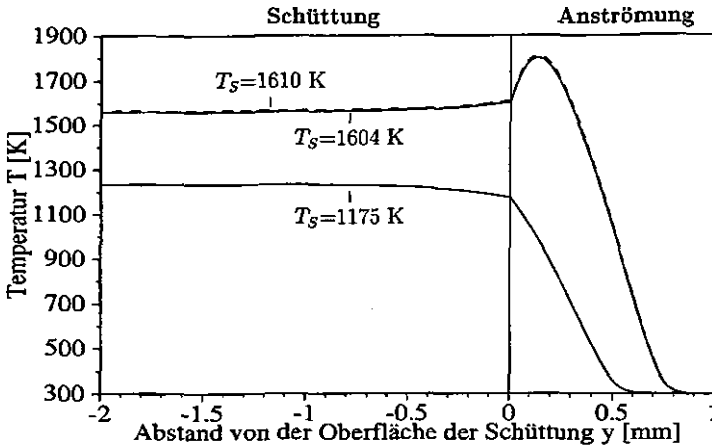


Abbildung 5.5: Temperaturprofile in der Schüttung und in der Anströmung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.4

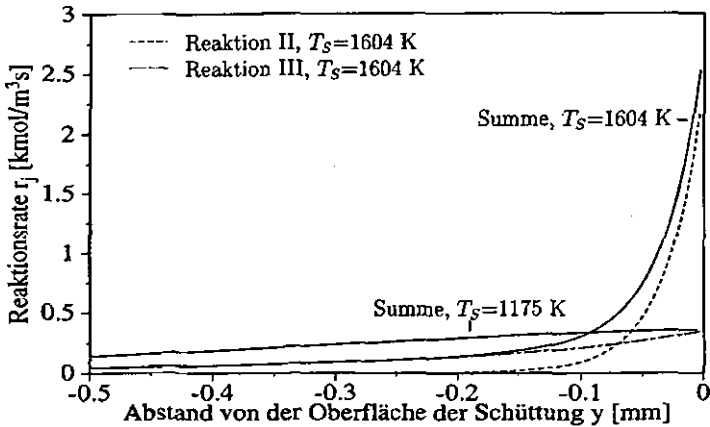


Abbildung 5.6: Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen in der Schüttung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.4

Vor dem Erreichen des Zündpunkts I der homogenen Reaktion läuft der Abbrand ausschließlich über Reaktion II ab (Abb. 5.6), der Abbrand an der inneren Oberfläche ist größer als der Abbrand an der Stirnfläche (siehe auch Abb. 5.3). Bei einer Erhöhung von  $\dot{q}$  über den Punkt I hinaus wird der Abbrand an der Stirnfläche zum dominierenden Anteil. Im oberflächennahen Bereich der Schüttung dominiert noch Reaktion II, weil der Sauerstoff vor der Wand nicht völlig verbraucht wird. Weiter im Inneren der Schüttung ist die Reaktion III die wesentliche Reaktion, da kein  $O_2$  vorliegt und der Kohlenstoff nur mit  $CO_2$  reagieren kann (Abb. 5.6). Allerdings ist das Temperaturniveau noch zu niedrig, um die Boudouard-Reaktion zum insgesamt dominierenden Reaktionsweg zu machen. Die Reaktionsrate der homogenen Reaktion als Funktion des Ortes ist in Abbildung 5.7 für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunkts dargestellt. Es ist eine Vervielfachung der Reaktionsrate und die Bildung eines deutlichen Maximums vor der Oberfläche zu erkennen. Dieses führt zu dem Temperaturmaximum vor der Oberfläche, das bereits in Abbildung 5.5 zu sehen war.

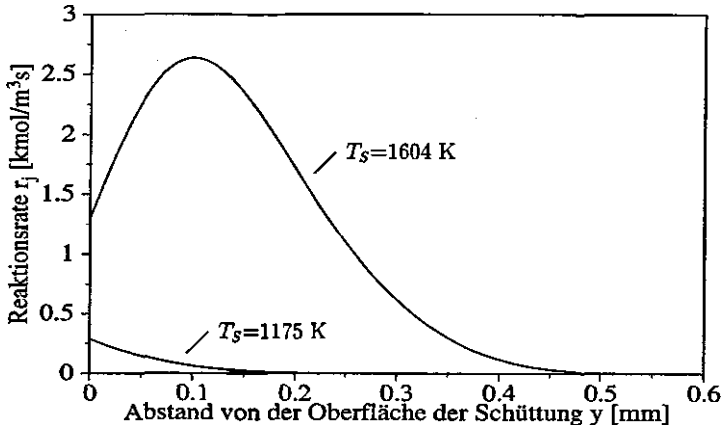


Abbildung 5.7: Reaktionsraten der homogenen Reaktion in der Anströmung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.4

In den Abbildungen 5.3-5.7 wurde die Zündung der homogenen Reaktion an einem konkreten Beispiel vorgestellt. Der Verlauf des Massenabbrandes als Funktion der Oberflächentemperatur  $T_S$  ist dabei stetig. Bei dem Verlauf der Temperatur  $T_S$  als Funktion des externen Wärmestroms  $\dot{q}$  erhält man ein stetiges Verhalten bei der Steuerung über  $T_S$ , hingegen kommt es zu einem sprunghaften Verhalten aufgrund des Zündens und Löschens der homogenen Reaktion bei einer Steuerung über  $\dot{q}$ . Analog zu dem Zündverhalten der heterogenen Reaktionen entstehen so Mehrfachlösungen, bei denen der obere und der untere Ast der S-Kurve physikalisch stabile Lösungen darstellen. Der mittlere Ast ist hingegen bei einer Steuerung über  $\dot{q}$  physikalisch instabil. Daß das Zündverhalten der

homogenen Reaktion nicht zwangsläufig mit derartigen Mehrfachlösungen verbunden ist, wird im Kapitel 5.2 gezeigt.

## 5.2 Parametervariationen

### Effektive Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{eff}$

Bei der Untersuchung der Zündung der heterogenen Reaktionen in Kapitel 4 wurde dem Einfluß der Wärmeleitfähigkeit der Schüttung  $\lambda_{eff}$  besondere Aufmerksamkeit gewidmet. In den Abbildungen 5.8 und 5.9 sind die Zünd- und Löscharakteristiken ( $T_S$  über  $\dot{q}$ ) und die Abbrandrate ( $\dot{m}$  über  $T_S$ ) für drei verschiedene Fälle von  $\lambda_{eff}$  dargestellt. Die Wärmeleitfähigkeit hat keinen Einfluß auf die Zünd- oder Löschtemperatur und nur einen geringen Einfluß auf den Wärmestrom am Zünd- bzw. Löschpunkt. Die drei Massenabbrandkurven sind nahezu identisch. Diese Verläufe zeigen, daß der Energietransport in der bzw. in die Schüttung für Gasphasenprozesse nur eine untergeordnete Rolle spielt.

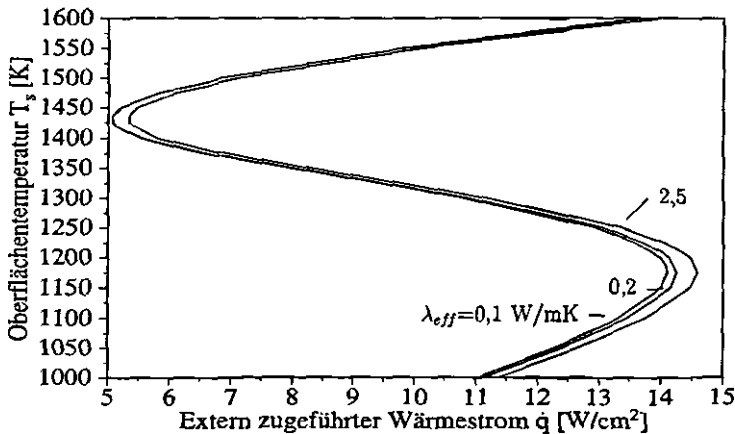


Abbildung 5.8: Oberflächentemperatur  $T_S$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte der effektiven Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{eff}$  der Schüttung  
( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

Einen großen Einfluß werden alle Größen haben, die die Kinetik der homogenen Reaktion direkt beeinflussen. Dies sind in erster Linie der zur Verfügung stehende Sauerstoff und der Wasserdampfgehalt der Anströmung, da dieser eine starke katalytische Wirkung hat. Eine Variation des Sauerstoffgehalts der Anströmung ist in der Abbildung 5.10, eine Variation des Wasserdampfgehalts der Anströmung in der Abbildung 5.11 dargestellt.

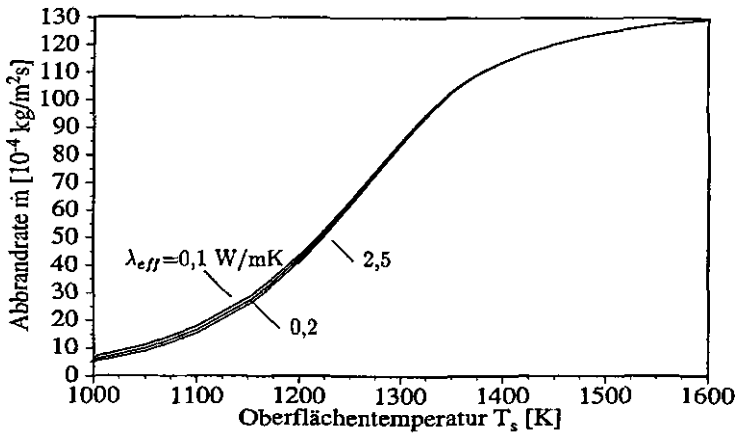


Abbildung 5.9: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$  für verschiedene Werte der effektiven Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{eff}$  der Schüttung  
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

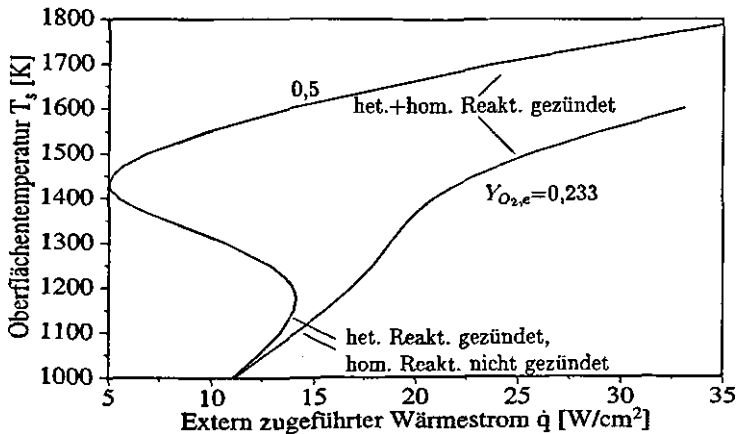


Abbildung 5.10: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Sauerstoffgehalts  $Y_{O_2,e}$  der Anströmung  
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

### Sauerstoffgehalt der Anströmung $Y_{O_2,e}$

In Abbildung 5.10 sieht man, daß eine Verringerung des Sauerstoffgehalts von  $Y_{O_2,e}=0,5$  auf  $Y_{O_2,e}=0,233$  zur Folge hat, daß die S-Form der Kurve der Temperatur  $T_S$  über den Wärmestrom nicht erhalten bleibt. Unabhängig von der Steuerung des Prozesses über  $T_S$  oder  $\dot{q}$  stellt sich immer eine eindeutige Lösung ein. Es gibt keine Mehrfachlösungen für einen bestimmten Wertebereich von  $\dot{q}$ , alle Lösungen sind stabil. Natürlich kommt es trotzdem zu einem Zünden der homogenen Reaktion und gegebenenfalls zu einem Ablösen der Flamme von der Oberfläche. Aber diese Vorgänge führen nicht zu einem sprunghaften Verhalten der Lösung, sondern die Übergänge erfolgen kontinuierlich. Daß die Zündung mit kontinuierlich oder diskontinuierlichen Effekten verbunden sein kann und mehrfache, stabile, stationäre Lösungen nicht zwangsweise vorliegen müssen, wurde ebenfalls bereits für die Zündung der heterogenen Reaktionen in Kapitel 4 festgestellt und diskutiert.

Aufgrund des S-Kriteriums läßt sich bei der Kurve für  $Y_{O_2,e}=0,233$  in Abbildung 5.10 kein Zündpunkt definieren. Wenn aus bestimmten Gründen ein Punkt festgelegt werden sollte, müßte dies nach einem anderen Kriterium erfolgen. Falls eine horizontale Tangente der Temperatur der Anströmung an der Oberfläche als Maß benutzt wird, ergibt sich eine Zündtemperatur oberhalb von  $T_S=1600$  K; die Flamme würde dann von der Oberfläche ablösen und in die Anströmung wandern. Der Verlauf der Kurve zwischen 1250 K und 1400 K kommt also nicht durch die Ablösung der Flamme zustande. Aber die CO-Oxidation kann nicht nur an einem Ort in der Grenzschicht ablaufen, sondern auch an bzw. direkt vor der Oberfläche. Das Einsetzen der homogenen Reaktion ist nicht zwangsläufig mit einem Temperaturmaximum vor der Oberfläche verbunden. Dieser Sachverhalt wird anschließend im Zusammenhang mit der Variation des Wasserdampfgehalts noch eingehender diskutiert.

### Wasserdampfgehalt der Anströmung $Y_{H_2O,e}$

Abbildung 5.11 zeigt die Oberflächentemperatur  $T_S$  über dem Wärmestrom  $\dot{q}$  für zwei verschiedene Werte des Wasserdampfgehalts der Anströmung. Hier ist wie schon bei der Sauerstoffvariation zu sehen, daß eine Verringerung der Reaktionsrate der homogenen Reaktion (durch eine Verringerung des  $Y_{H_2O,e}$ ) zu einer Abschwächung der S-Form der Kurve führt. Für  $Y_{H_2O,e}=0,0001$  existiert noch ein sehr kleiner Bereich von  $\dot{q}$ -Werten, in dem sich der obere und untere Ast der Kurve überlappen, in dem also zwei Lösungen vorliegen. Welche der Lösungen sich einstellt, hängt von den Anfangsbedingungen des Prozesses ab. Die dazwischen liegenden Lösungen sind instabil im Fall der Steuerung über  $\dot{q}$ , wohingegen sich bei einer Steuerung über  $T_S$  immer eindeutige Lösungen ergeben.

Interpretiert man die Umkehrpunkte bei dem S-förmigen Verlauf, wie dies üblich ist, als Zünd- bzw. Löschpunkt, so ergibt sich für  $Y_{H_2O,e}=0,0001$  eine Zündtemperatur von  $T_S=1250$  K. Bei einer Erhöhung von  $\dot{q}$  über den Zündpunkt hinaus springt die Oberflächentemperatur auf 1400 K. In Abbildung 5.12 sind für diese beiden und eine dritte, weiter oberhalb liegende Temperatur  $T_S$  die Temperaturprofile in der Schüttung und in der Grenzschicht zu sehen. Es liegt kein Maximum der Temperatur in der Anströmung vor. Abbildung 5.11 zeigt jedoch für diesen Bereich einen S-förmigen Verlauf. Dieser muß

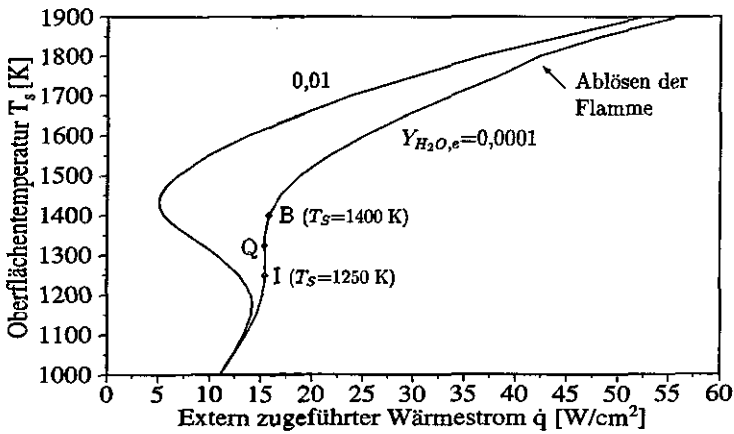


Abbildung 5.11: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Wasserdampfgehalts  $Y_{H_2O,e}$  der Anströmung ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

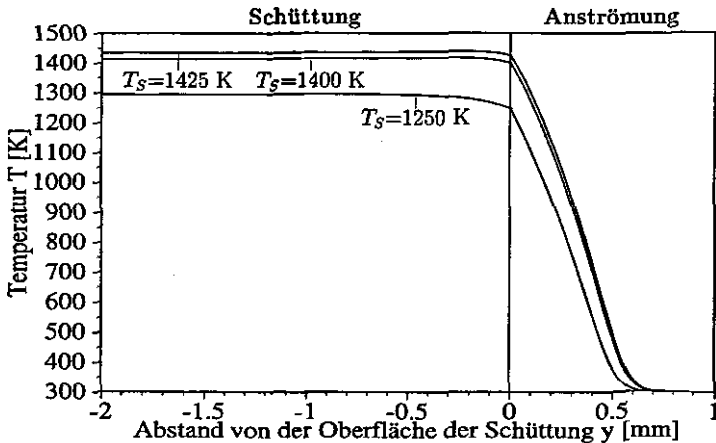


Abbildung 5.12: Temperaturprofile in der Schüttung und in der Anströmung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.11

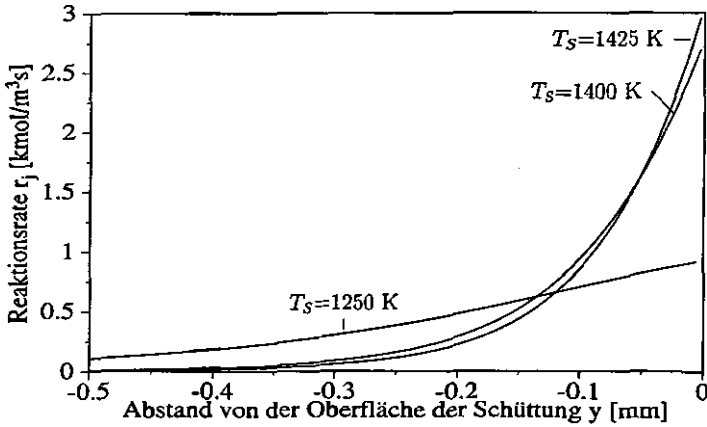


Abbildung 5.13: Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen in der Schüttung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.11

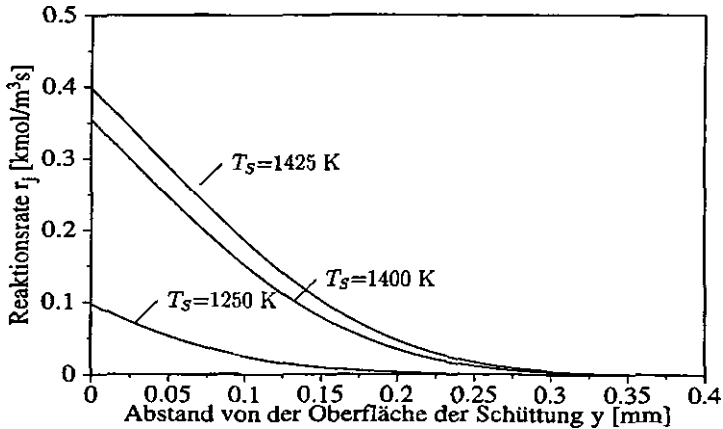


Abbildung 5.14: Reaktionsraten der homogenen Reaktion in der Anströmung für Oberflächentemperaturen unterhalb und oberhalb des Zündpunktes I aus Abbildung 5.11

sich also durch Prozesse ergeben, die an bzw. direkt vor der Oberfläche ablaufen. Die Reaktionsraten der heterogenen und homogenen Reaktionen sind in den Abbildungen 5.13 und 5.14 zu sehen. Die Maxima sowohl der heterogenen Reaktionsrate wie auch der homogenen Reaktionsrate sind an der Oberfläche der Schüttung zu finden. Von 1250 K zu 1400 K erhöht sich die Reaktionsrate in der Schüttung deutlich (Reaktion II ist in allen Fällen die dominierende Reaktion), dadurch wird mehr  $CO$  produziert. Die Reaktionsrate der homogenen Reaktion steigt auch deutlich an. Sowohl Reaktion II ( $2C + O_2 \rightarrow 2CO$ ) als auch Reaktion IV ( $2CO + O_2 \rightarrow 2CO_2$ ) sind exotherme Reaktionen. Durch die Steigerung der Reaktionsraten wird Wärme frei, was laut Abbildung 5.11 dazu führt, daß man in einem kleinem Bereich von  $\dot{q}$  ein sprungartiges Verhalten der stationären Lösung erhält. Für den Fall  $Y_{O_2,e}=0,233$  (Abb. 5.10) laufen prinzipiell die analogen Mechanismen ab, lediglich regelt sich der Energiebedarf nicht so ein, daß gerade ein Bereich mit Mehrfachlösungen entsteht.

Der Verlauf der Kurve für  $Y_{O_2,e}=0,233$  um  $T_S=1300$  K in Abbildung 5.10 wie auch der S-förmige Verlauf für  $Y_{H_2O,e}=0,0001$  sind also auf das Zünden (= verstärktes Ablaufen) der homogenen Reaktion zurückzuführen, nicht aber auf das Entstehen eines Temperaturmaximums in der Anströmung. Das Ablösen der Flamme von der Oberfläche erfolgt für  $Y_{H_2O,e}=0,0001$  bei etwa  $T_S=1750$  K und führt zu dem geringfügigen Versatz der Kurve, der an dieser Stelle in Abbildung 5.11 zu sehen ist. Bei der in Abbildung 5.4 vorgestellten Kurve, die auch in den Abbildungen 5.10 und 5.11 jeweils mit eingezeichnet ist, fallen die Zündung der homogenen Reaktion und das Entstehen eines Temperaturmaximums in der

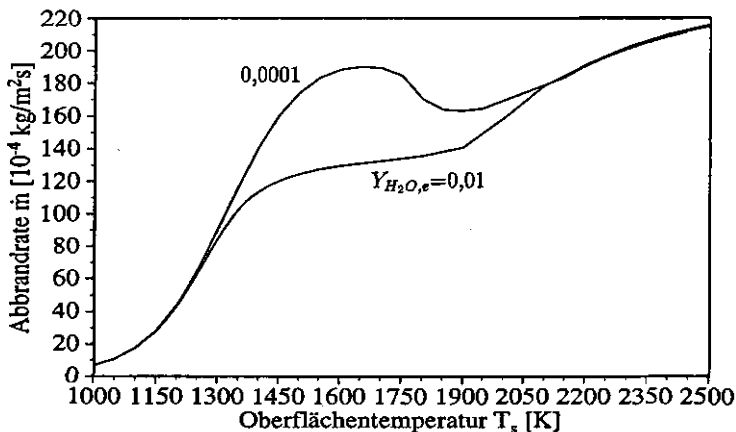


Abbildung 5.15: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$  für verschiedene Werte des Wasserdampfgehalts  $Y_{H_2O,e}$  der Anströmung  
 ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $\phi=0,5$ ,  $r_p=1$  mm)

Anströmung zusammen.

Betrachtet man den Massenabbrand  $\dot{m}$  als Funktion der Oberflächentemperatur  $T_s$  (Abb. 5.15), so erkennt man je nach Wasserdampfgehalt der Anströmung nicht nur eine Stagnation von  $\dot{m}$  in einem mittleren Temperaturbereich, sondern sogar einen Rückgang. Dieser Effekt wurde bereits im Zusammenhang mit Abbildung 5.3 besprochen und ist hier noch stärker zu sehen. Durch die einsetzende homogene Reaktion steht weniger Sauerstoff für die Oxidation des Kohlenstoffs zur Verfügung. Die Boudouard-Reaktion kann diesen Rückgang der Reaktionsrate II nicht ausgleichen, so daß es zu einer Verringerung des Massenabbrandes kommt bis die Boudouard-Reaktion aufgrund höherer Temperaturen verstärkt abläuft. Für eine andere Kinetik der Boudouard-Reaktion und den Fall einer geschlossenen Oberfläche in einer Staupunktströmung kann an dieser Stelle im Verlauf von  $\dot{m}$  eine Diskontinuität entstehen [7].

Die bisher diskutierten Abbildungen haben gezeigt, daß die Parameter, die einen Einfluß auf die Gasphasenreaktion haben, die Zünd- und Löschcharakteristik und auch die Abbrandrate bestimmen. Analog zur Untersuchung der Zündung der heterogenen Reaktionen werden weitere Parameter variiert und ihr Einfluß aufgezeigt.

### Staupunktgradient $\alpha$

Abbildung 5.16 zeigt die Oberflächentemperatur  $T_s$  als Funktion des extern zugeführten Wärmestroms  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Staupunktgradienten  $\alpha$ . Die Zündtemperatur

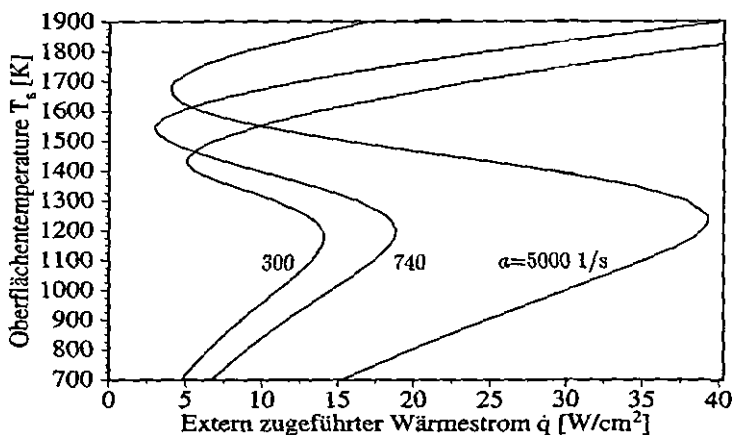


Abbildung 5.16: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Staupunktgradienten  $\alpha$   
 $(Y_{O_2,e}=0,5, Y_{H_2O,e}=0,01, \lambda_{eff}=0,1 \text{ W/mK}, \phi=0,5, r_p=1 \text{ mm})$

wird durch den Wert von  $a$  nicht stark beeinflusst, wohl aber der zur Zündung nötige Wärmestrom  $\dot{q}$ . Dies zeigt, daß der Sauerstofftransport keine große Rolle spielt, sondern es muß die hinreichende Energie für die Zündung zur Verfügung stehen. Wenn man den Staupunktgradienten erhöht, wird die Oberfläche der Schüttung gekühlt, daher muß ein größeres  $\dot{q}$  zugeführt werden. Anders verhält es sich beim Löschpunkt. Wie zu sehen ist, ändern sich dort  $\dot{q}$  und  $T_S$  mit einer Änderung von  $a$ . Wenn die homogene Reaktion abläuft, verstärkt ein größeres  $a$  den Massenabbrand und erhöht die Temperatur  $T_S$ .

### Schüttungsporosität $\phi$

In Abbildung 5.16 deutet sich an, daß die S-förmigen Verläufe, die sowohl für die heterogene Zündung als auch für die homogene Zündung entstehen können, sich gegenseitig überlappen können. Dies wird bei der Variation der Porosität  $\phi$  besonders deutlich (Abb. 5.17). Der Zündpunkt der homogenen Reaktion wird durch die Porosität nicht stark beeinflusst, ein großer Unterschied zeigt sich beim Löschpunkt. Wenn die homogene Reaktion gezündet ist, überwiegt der Stirnflächenabbrand, der für eine kleine Porosität größere Werte annimmt (Abb. 5.18). Durch den verstärkten Abbrand kann  $\dot{q}$  kleinere Werte annehmen bevor die homogene Reaktion verlöscht.

Für  $\phi = 0,5$  bzw.  $\phi = 0,7$  ist in Abbildung 5.17 folgender Zündmechanismus zu erkennen: Bei einer Steigerung von  $\dot{q}$  zünden zunächst die heterogenen Reaktionen, dann die homogene Reaktion. Beide Zündvorgänge sind mit einer Unstetigkeit der stationären Lösung

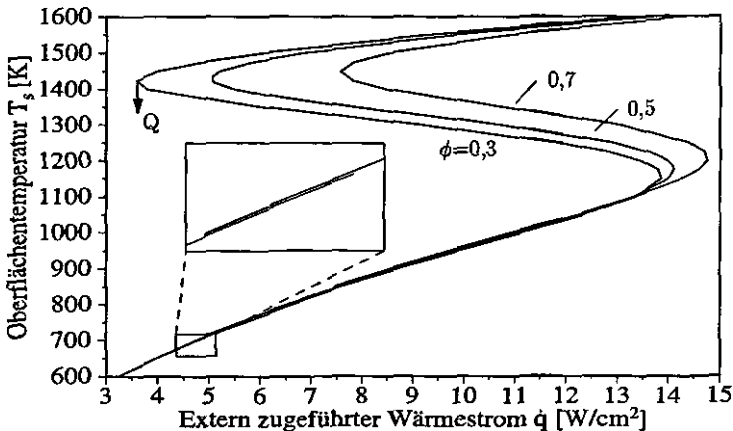


Abbildung 5.17: Oberflächentemperatur  $T_S$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte der Porosität  $\phi$  ( $a=300$  1/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $r_p=1$  mm)

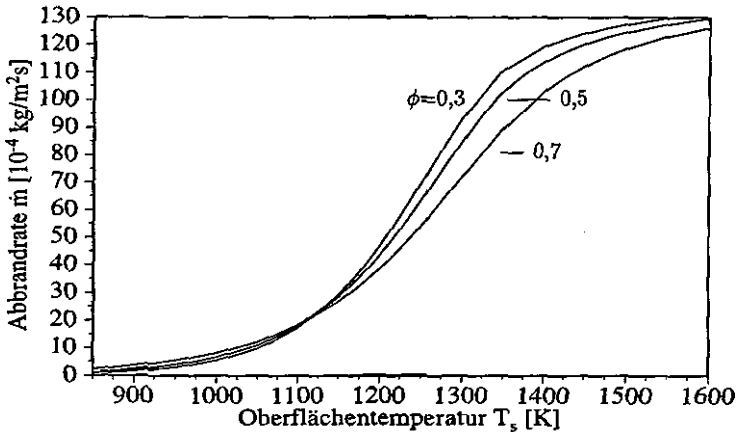


Abbildung 5.18: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$  für verschiedene Werte der Porosität  $\phi$   
 $(\alpha=300 \text{ 1/s}, Y_{O_2,e}=0,5, Y_{H_2O,e}=0,01, \lambda_{eff}=0,1 \text{ W/mK}, \tau_p=1 \text{ mm})$

verbunden. Sowohl im Bereich der heterogenen Zündung als auch im Bereich der homogenen Zündung gibt es zwei physikalisch stabile Lösungen und einen dazwischen liegenden, instabilen Ast der Kurve. Wird, von einer homogen gezündeten Lösung ausgehend,  $\dot{q}$  verringert, verlöscht zunächst die homogene Reaktion, die heterogenen Reaktionen bleiben gezündet. Erst bei einer weiteren Verringerung von  $\dot{q}$  verlöschen auch die heterogenen Reaktionen. Für  $\phi = 0,3$  ergibt sich ein unterschiedliches Verhalten: Für ein größeres  $\dot{q}$  läuft ein analoger zweistufiger Zündprozeß ab. Wenn aber  $\dot{q}$  vom obersten Ast der Kurve ausgehend verringert wird, kommt es beim Löschpunkt zum gleichzeitigen Löschen der homogenen und heterogenen Reaktionen, weil  $\dot{q}_{Q,hom} < \dot{q}_{Q,heter}$ . Somit gibt es einen Bereich, in dem für einen Wert des Wärmestroms  $\dot{q}$  fünf stationäre Lösungen existieren, von denen drei stabil sind: (1) die heterogenen Reaktionen und die homogene Reaktion sind nicht gezündet; (2) die heterogenen Reaktionen sind gezündet, aber die homogene Reaktion ist nicht gezündet; (3) sowohl die heterogenen Reaktionen als auch die homogene Gasphasenreaktion sind gezündet. Bei einer Steuerung des Prozesses über die Oberflächentemperatur  $T_s$  liegen maximal drei Lösungen vor (im Bereich der heterogenen Zündung), bei der homogenen Zündung sind alle Lösungen eindeutig.

Entsprechende (qualitative) Effekte aufgrund des Einflusses anderer Größen haben auch Zhang [6] für ein Einzelpartikel und Henriksen et al. [7] für eine geschlossene Oberfläche festgestellt.

Der Verlauf des Massenabbrandes (Abb. 5.18), der oben bereits kurz erwähnt wurde, zeigt einen Schnittpunkt der Kurven für unterschiedliche Werte der Porosität  $\phi$ . Bei niedrigen Oberflächentemperaturen überwiegt  $\dot{m}(\phi = 0,7)$ , bei höheren Temperaturen  $\dot{m}(\phi = 0,3)$ .

Dies liegt daran, daß bei gezündeten heterogenen Reaktionen im Inneren die Maximaltemperatur in der Schüttung für  $\phi = 0,7$  höher ist als für  $\phi = 0,3$ . Aufgrund der größeren Porosität kann mehr Sauerstoff in die Schüttung diffundieren, was zu höheren Temperaturen und größerem Abbrand führt. Dies ändert sich, wenn der Stirnflächenabbrand dominant wird. Dann überwiegt  $\dot{m}$  für eine Schüttung mit größerer Stirnfläche, also mit kleinerer Porosität ( $\phi = 0,3$ ).

### Partikelradius $r_p$

Als letztes Ergebnis wird in Abbildung 5.19 das Zünd- und Löschverhalten der homogenen Reaktion bei einer Änderung des Partikelradius gezeigt. Der Einfluß ist nicht sehr groß. Ein kleinerer Radius führt zu einer größeren inneren Oberfläche der Schüttung und damit zu einem höheren Massenabbrand. Durch diese verstärkte  $CO$ -Bildung tritt die Zündung der homogenen Reaktion für ein etwas kleineres  $\dot{q}$  ein. Der Löschpunkt liegt aufgrund der stärkeren heterogenen Reaktionen ebenfalls etwas weiter links.

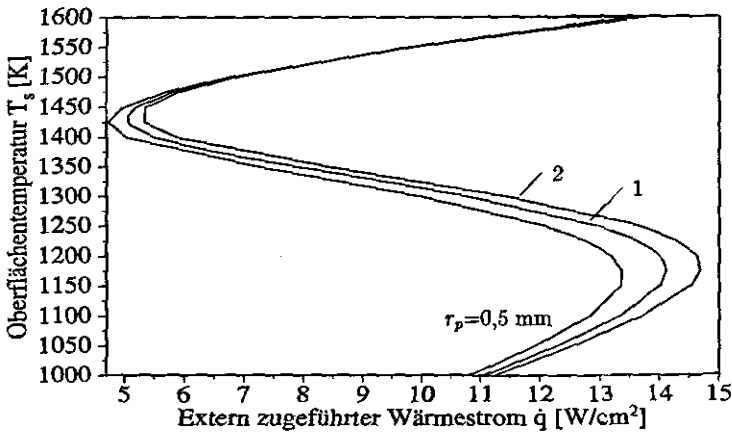


Abbildung 5.19: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  für verschiedene Werte des Partikelradius  $r_p$   
 ( $a=300$  l/s,  $Y_{O_2,e}=0,5$ ,  $Y_{H_2O,e}=0,01$ ,  $\lambda_{eff}=0,1$  W/mK,  $\phi=0,5$ )

Die Abbildungen zum Zünd- und Löschverhalten der homogenen Reaktion haben gezeigt, daß die Zündung zu einem S-förmigen Verlauf bei der Abhängigkeit der Oberflächentemperatur von dem Wärmestrom  $\dot{q}$  führen kann. Dabei stellten sich für die hier verwendeten Größen bei einer Steuerung über  $T_s$  immer eindeutige Lösungen ein, wohingegen es bei einer Steuerung über  $\dot{q}$  zu Mehrfachlösungen kommen kann. Es kann zu einer Überschneidung der Bereiche der heterogenen und der homogenen Zündung kommen.

Den größten Einfluß auf den Verlauf der Oberflächentemperatur als Funktion des externen Wärmestroms haben die Parameter, die einen direkten Einfluß auf die Gasphasenreaktion haben, wie  $Y_{O_2,e}$  und  $Y_{H_2O,e}$ . Die sprungartige Änderung von  $T_S$  bei einer kleinen Änderung von  $\dot{q}$  muß nicht aus der Ablösung der Flamme resultieren, sondern kann auch auftreten, wenn die Gasphasenreaktion an bzw. direkt vor der Oberfläche abläuft. Schließlich wurde gezeigt, daß bei der hier verwendeten Kohlenstoffkinetik in der Regel die Zündung der heterogenen und homogenen Reaktionen in zwei getrennten Schritten und auch die Löschung in zwei aufeinander folgenden Schritten erfolgt. Je nach Parameterwahl können die homogene und heterogenen Reaktionen aber auch gleichzeitig verlöschen.

### 5.3 Vergleich mit den Ergebnissen für eine geschlossene Wand

Abbildung 5.20 zeigt den Massenabbrand über der Wand- bzw. Oberflächentemperatur für eine Schüttung und für eine geschlossene Wand. Die Ergebnisse für den Fall der geschlossenen Wand wurden bereits von Henriksen [7, 80, 81] vorgestellt und dienen für das in der vorliegenden Arbeit verwendete Modell als Testfall (siehe Kap. 8.1). In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse für eine Schüttung und für eine geschlossene Oberfläche verglichen werden.

Bei niedrigen Temperaturen überwiegt der Massenabbrand der Schüttung. Es steht eine große innere Oberfläche zur Verfügung und nach Zündung der heterogenen Reaktionen liegt im Inneren der Schüttung eine Maximaltemperatur vor, die größer als die Oberflächentemperatur ist. Die Oberflächentemperatur ist also nicht mehr die geeignetste

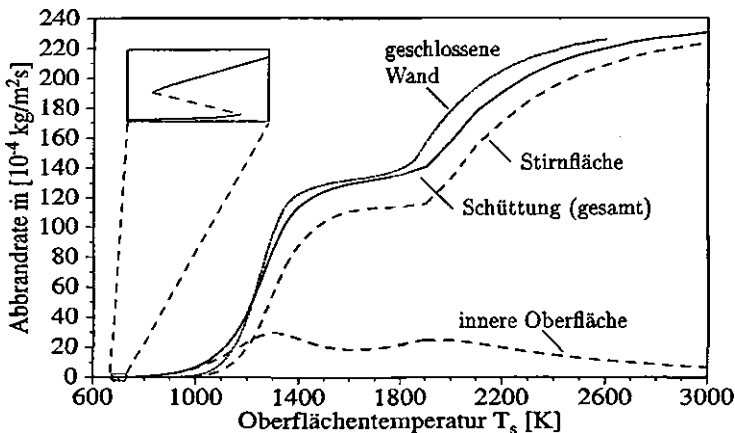


Abbildung 5.20: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur  $T_s$ , Vergleich des Abbrands einer Schüttung mit dem Abbrand einer geschlossenen Oberfläche

Größe zur Beschreibung des Prozesses, die charakteristische Temperatur für die Reaktionszone ist  $T_{max}$ . In diesem Temperaturbereich der Oberflächentemperatur brennt eine Schüttung schneller als eine geschlossene Wand.

Bei höheren Temperaturen wird der Stirflächenabbrand dominant. Hier hat eine Schüttung einen kleineren Flächenanteil als die geschlossene Wand, der innere Abbrand wird zudem durch die Transportmechanismen in der Schüttung kontrolliert. Dadurch überwiegt der Abbrand einer geschlossenen Wand für die in den vorliegenden Rechnungen gewählten Stoff- und Transportgrößen.

Bei hohen Temperaturen wird der Abbrand nur durch den Transport in der Grenzschicht der Anströmung kontrolliert, daher streben  $\dot{m}_{Schütt}$  und  $\dot{m}_{Wand}$  gegen denselben Grenzwert.

In Abbildung 5.21 ist derselbe Vergleich für die Oberflächentemperatur als Funktion des externen Wärmestroms dargestellt. Qualitativ sind die Kurven sehr ähnlich, was auch ein Hinweis darauf ist, daß vor allem die Gasphase und nicht die Schüttung verantwortlich für das Verhalten ist. Quantitativ kann man die Kurven nicht genau miteinander vergleichen, da man den Zünd- und Löschpunkt bei der Schüttung durch die Parameter wie  $\phi$  und  $r_p$  etwas verschieben kann, und außerdem bei den Rechnungen für die geschlossene Wand die Wärmeleitung in das feste Material vernachlässigt wurde.

Ein Unterschied zwischen den Kurven in Abbildung 5.21 ist zudem der physikalische Mechanismus, der zu dem gezeigten S-förmigen Verlauf führt. Während beim Fall der Schüttung auf dem unteren Ast der Kurve bereits die heterogenen Reaktionen gezündet

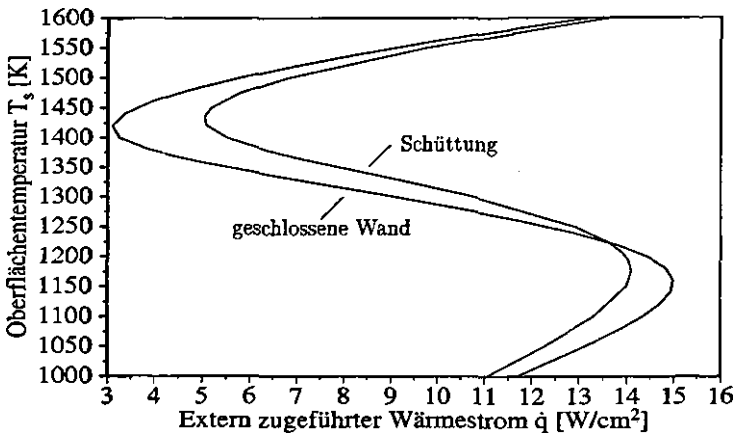


Abbildung 5.21: Oberflächentemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$ , Vergleich des Abbrandes einer Schüttung mit dem Abbrand einer geschlossenen Oberfläche

sind, ist dies bei den gezeigten Ergebnissen für die Wand nicht der Fall. Auch hier besteht aber eine starke Abhängigkeit von Parametervorgaben für zum Beispiel den Wasserdampfgehalt der Anströmung und für die reaktionskinetischen Konstanten [7]. Der Vergleich in Abbildung 5.21 darf daher nicht überbewertet werden, sondern kann lediglich zeigen, daß die Effekte aufgrund der Dominanz der Gasphase (und der Stirnfläche der Schüttung) in einem ähnlichen Bereich der Temperatur- und Wärmestromwerte ablaufen.

Die Abbildungen zeigen, daß das qualitative Abbrandverhalten einer Schüttung dem Abbrand einer geschlossenen Oberfläche gleicht. Dies liegt daran, daß aufgrund der verwendeten Kohlenstoff-Kinetik zwar bei niedrigen Temperaturen die heterogenen Reaktionen im Inneren zünden, aber bei höheren Oberflächentemperaturen sehr bald nur noch die Stirnfläche der Schüttung und die Anströmung einen bestimmenden Einfluß haben. Die Verwendung einer anderen Kinetik, bei der heterogene und homogene Reaktionen nicht in so weit auseinanderliegenden Temperaturbereichen zünden, führt sicherlich zu größeren Unterschieden zwischen dem Verhalten einer Schüttung und dem Verhalten einer geschlossenen Oberfläche.

## 6 Zusammenfassung

Beim Abbrand von porösen Materialien bzw. Schüttungen kann es zu Reaktionen sowohl im Inneren des Materials als auch in der umgebenden Gasphase kommen. Die Kopplung dieser Prozesse beeinflusst das Zünd- und Abbrandverhalten der Schüttung und muß daher betrachtet werden, wenn Aussagen über solche Verbrennungsprozesse gemacht werden sollen.

In der vorliegenden Arbeit wurde der Abbrand einer Schüttung in einer Staupunktströmung untersucht. Dabei konnten heterogene Reaktionen zwischen dem Feststoff und dem Gas in der Schüttung bzw. an ihrer Oberfläche ablaufen. Zusätzlich wurde eine homogene Gasphasenreaktion in der Grenzschicht der Anströmung berücksichtigt. Aufgrund der unzureichend bekannten Kinetik vieler Schüttgüter wurde ein Reaktionsmechanismus für Kohlenstoff benutzt. Die Partikeln können mit Sauerstoff zu Kohlenmonoxid bzw. Kohlendioxid reagieren, zudem wird die Vergasung der Partikeln durch Kohlendioxid (Boudouard-Reaktion) betrachtet. In der Gasphase kann das entstandene Kohlenmonoxid zu Kohlendioxid oxidieren, was durch eine Globalreaktion beschrieben wurde. Die reaktionskinetischen Konstanten wurden der Literatur entnommen und sind experimentell abgesichert.

Die Rechnungen beschränkten sich auf die Staupunktstromlinie. In der Anströmung wurden die Kontinuitätsgleichung, Impulsgleichung, Energiegleichung und Speciesgleichung (für  $O_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $H_2O$ ,  $N_2$ ) aufgestellt. In der Schüttung wurden die Kontinuitätsgleichung für die Gasphase, die kombinierte Energiegleichung für die feste und die gasförmige Phase und die Speciesgleichung für die Gaskomponenten formuliert. Die Partikeln wurden dabei als ruhend angenommen.

Es wurde vorausgesetzt, daß die Schüttung an einem Ende verschlossen ist, so daß sie nicht durchströmt werden konnte, sondern nur angeströmt wurde. An der Oberfläche wurden die Teilsysteme der Schüttung und der Anströmung über Bilanzgleichungen für Masse, Energie und Species gekoppelt. Die Differentialgleichungen wurden mit der Finite-Volumen-Methode diskretisiert und mit einem modifizierten PISO-Algorithmus gelöst.

### Zweistufiger Zündvorgang:

Aufgrund der verwendeten Kinetik und der gewählten Parameter ergab sich in den meisten Rechnungen ein zweistufiger Prozeß für die Zündung der heterogenen und homogenen Reaktionen: Bei einer Erhöhung der zugeführten Wärme zur Oberfläche der Schüttung zünden zunächst die heterogenen Reaktionen, die homogene Reaktion läuft noch nicht ab. Bei einer weiteren Erhöhung des Wärmestroms zündet auch die homogene Reaktion, die Flamme kann zusätzlich von der Oberfläche ablösen. Wird der Wärmestrom jetzt verringert, verlöscht zunächst die homogene Reaktion, die heterogenen Reaktionen bleiben gezündet und laufen weiter ab. Bei einer weiteren Verringerung des Wärmestroms verlöschen auch die heterogenen Reaktionen.

Dieser zweistufige Prozeß kann sich für andere Stoffgrößen und sonstige Parametervorgaben ändern. So wurde zum Beispiel gezeigt, daß es vorkommen kann, daß die homogene Reaktion und die heterogenen Reaktionen gleichzeitig verlöschen.

**Heterogene Zündung:**

Durch die Zündung der heterogenen Reaktionen im Inneren der Schüttung kann es zu Unstetigkeiten beim Massenabbrand, den Temperaturverläufen und dem von außen nötigen Wärmestrom (der Abbrand ist in der Regel für Kohlenstoff nicht selbsterhaltend) kommen. Es können sich dann für einen Wert der Oberflächentemperatur der Schüttung oder einen Wert des zugeführten Wärmestroms drei stationäre Lösungen ergeben, von denen ein Zustand physikalisch instabil ist. Welche der Lösungen sich einstellt, ist von den Anfangsbedingungen abhängig. Die Zündung kann auch stetig einsetzen und führt nicht zwangsläufig zu unstetigen Änderungen der Zustände in der Schüttung. Durch Parameterstudien wurde gezeigt, daß zum Beispiel die effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung einen großen Einfluß auf die Zünd- und Löschcharakteristik der heterogenen Reaktionen hat. Dies hat eine praktische Bedeutung, da der Wert der Wärmeleitfähigkeit einer Schüttung nur relativ schwer theoretisch angegeben werden kann, diese Unsicherheit aber zu stark unterschiedlichen Lösungen führen kann.

Die Zündtemperatur der heterogenen Reaktionen kann in Anlehnung an die Theorie von Frank-Kamenetskii zur thermischen Zündung durch eine analytische Rechnung bestimmt werden. Die sich so ergebenden Werte liegen sehr nahe an den numerisch ermittelten Ergebnissen. Die resultierende Gleichung kann außerdem dazu benutzt werden, den qualitativen Einfluß vieler Größen abzuschätzen.

**Homogene Zündung:**

Die Zündung der homogenen Reaktion kann ebenfalls, wie die Zündung der heterogenen Reaktionen, mit stetigen oder unstetigen Änderungen des Abbrandverhaltens verbunden sein. Für die Charakteristik der homogenen Zündung sind vor allem die Größen entscheidend, die die Gasphasenreaktion beeinflussen, wie der Sauerstoff- und Wasserdampfgehalt der Anströmung.

**Steuerung des Abbrandes über Oberflächentemperatur oder Wärmestrom zur Oberfläche:**

Es macht einen großen Unterschied, ob die Steuerung des Abbrandes durch eine konstante Oberflächentemperatur der Schüttung oder einen konstanten externen Wärmestrom zur Oberfläche erfolgt. Bei einer Vorgabe der Oberflächentemperatur können sich durch die Zündung der heterogenen Reaktionen nicht-eindeutige Lösungen ergeben, wohingegen es im Bereich der Zündung der homogenen Reaktion immer eine eindeutige Lösung gibt. Anders verhält es sich bei einer Steuerung über den Wärmestrom. Hier kann es sowohl durch die Zündung der heterogenen Reaktionen als auch durch die Zündung der homogenen Reaktion zu mehrfachen stationären Lösungen kommen. Weil sich die Bereiche der heterogenen und homogenen Zündung überschneiden können, ergeben sich bis zu fünf verschiedene Lösungen für einen vorgegebenen Wert des Wärmestroms. Von diesen fünf Lösungen sind drei Zustände physikalisch stabil: (1) die heterogenen Reaktionen und die homogene Reaktion sind nicht gezündet; (2) die heterogenen Reaktionen sind gezündet, aber die homogene Reaktion ist nicht gezündet; (3) sowohl die heterogenen Reaktionen als auch die homogene Gasphasenreaktion sind gezündet.

Das in dieser Arbeit vorgestellte Modell stellt eine Grundlage dar, mit der der Abbrand einer Schüttung in einer Anströmung betrachtet werden kann. Die Kopplung der Prozesse im Inneren des Materials und in der umgebenden Gasphase spielen bei ungewolltem Abbrand (sicherheitstechnische Überlegungen, Umschlag von Schwelbrand in flammenden Abbrand) und bei gewolltem Abbrand (Müllverbrennung u.a.) eine Rolle. Aufbauend auf den bis jetzt gewonnenen Erfahrungen und Erkenntnissen kann das Modell ausgebaut werden, um mehr Ergebnisse für solche Prozesse zu erzielen.

Im folgenden werden einige Vorschläge gemacht, an welchen Punkten eine Erweiterung ansetzen könnte:

Es wird zur Zeit aufgrund der kleinen Abbrandraten vorausgesetzt, daß der Druck in der Schüttung konstant ist. Diese Bedingung kann aufgehoben werden, um z.B. eine Durchströmung realistisch zu simulieren bzw. den Einfluß von Auftriebskräften zu untersuchen. Zu diesem Zweck muß die Impulsgleichung gelöst werden, was innerhalb des PISO-Algorithmus keine Schwierigkeit darstellt, sondern im Gegenteil sogar ein zentraler Punkt ist. Die Einbindung der Impulsgleichung kann dazu führen, daß sehr kleine Zeitschrittweiten durch die auftretenden akustischen Effekte nötig werden. Zur Behebung dieses Problems können die Impulsgleichung und das ideale Gasgesetz entkoppelt werden [103, 125].

Beim Abbrand von Partikeln können sich sowohl der Radius als auch die innere Porosität und damit die Dichte ändern. Keiner dieser beiden Effekte wurde bei den vorgestellten Rechnungen berücksichtigt. Durch die Berechnung der Grenzfälle, (a) Partikeln brennen nur außen ab, Radius wird kleiner bei konstanter Dichte und (b) Partikeln brennen hohl aus, Dichte wird kleiner bei konstantem Radius, könnte der Einfluß dieser Effekte abgeschätzt werden.

Bei der Verwendung kinetischer Daten für Kohlenstoff liegen die heterogene Zündung und die homogene Zündung relativ weit auseinander. Dies gilt sowohl für eine Steuerung über die Oberflächentemperatur der Schüttung als auch für eine Steuerung über einen zugeführten externen Wärmestrom zur Oberfläche. Bei Materialien, bei denen diese Effekte dichter zusammen liegen, tritt die Bedeutung der Betrachtung der Kopplung der Prozesse in der Schüttung und in der Anströmung noch deutlicher hervor.

Es wurden ausschließlich stationäre Lösungen vorgestellt. Der Umschlag vom Schwelbrand in den flammenden Brand zum Beispiel ist ein instationäres Phänomen. Wenn die zeitliche Entwicklung solcher Prozesse studiert werden soll, müssen instationäre Lösungen berechnet werden. Der PISO-Algorithmus ist dazu geeignet, da er ein Verfahren zur Lösung instationärer Differentialgleichungen ist.

Zum quantitativen Vergleich mit experimentellen Ergebnissen ist es nötig, den Algorithmus auf zwei Dimensionen zu erweitern. Für die korrekte Modellierung des Stoff- und Energietransports in der Schüttung kann die zweite Koordinatenrichtung sehr wichtig sein. Allerdings sollte man bedenken, daß auch bei einem mehrdimensionalen Modell ein quantitativer Vergleich mit experimentellen Werten nur möglich ist, wenn man die Kinetik des in den Experimenten verwendeten Materials hinreichend genau modellieren kann.

## 7 Literaturverzeichnis

- [1] Ohlemiller, T.J., Modeling of Smoldering Combustion Propagation, *Prog. Energy Combust. Sci.* **11**: 277-310 (1985).
- [2] Ohlemiller, T.J., Rogers, F.E., A Survey of Several Factors Influencing Smoldering Combustion in Flexible and Rigid Polymer Foams, *J. Fire & Flammabil.* **9**: 489-509 (1978).
- [3] Gann, R.G., Clarke, F.B., Smoldering of Porous Materials, *Cellular and non cellular Polyurethanes*, Int. Conference, Strasbourg, France, June 9-13, 1980, Hanser Verlag, München (1980).
- [4] Fernandez-Pello, A.C., The Challenge of Fire Prediction, *Combust. Sci. and Tech.* **98**: 281-290 (1994).
- [5] Gururajan, V.S., Wall T.F., Gupta, R.P., Truelove, J.S., Mechanisms for the Ignition of Pulverized Coal Particles, *Combust. Flame* **81**: 119-132 (1990).
- [6] Zhang, D.-K., Bifurcation Behavior in a Homogeneous - Heterogeneous Reaction System with a Constant Power Source, *Combust. Flame* **96**: 171-178 (1994).
- [7] Henriksen, K., Hocks, W., Adomeit, G., Combustion of a Carbon Surface in a Stagnation Point Flow Field, Part II: Ignition and Quench Phenomena, *Combust. Flame* **71**: 169-177 (1988).
- [8] Annamalai, K., Ryan, W., Interactive Processes in Gasification and Combustion - II. Isolated Carbon, Coal and Porous Char Particles, *Prog. Energy Combust. Sci.* **19**: 383-446 (1993).
- [9] Issa, R.I., Solution of the Implicitly Discretised Fluid Flow Equations by Operator-Splitting, *J. Comput. Phys.* **62**: 40-65 (1986).
- [10] Issa, R.I., Gosman, A.D., Watkins, A.P., The Computation of Compressible and Incompressible Recirculating Flows by a Non-iterative Implicit Scheme, *J. Comput. Phys.* **62**: 66-82 (1986).
- [11] Issa, R.I., Ahmadi-Befrui, B., Beshay, K.R., Gosman, A.D., Solution of the Implicitly Discretised Reacting Flow Equations by Operator-Splitting, *J. Comput. Phys.* **93**: 388-410 (1991).
- [12] Cohen, L., Luft, N.W., Combustion of Dust Layers in Still Air, *Fuel* **34**: 154-163 (1955).
- [13] Palmer, K.N., Smouldering Combustion in Dusts and Fibrous Materials, *Combust. Flame* **1**: 129-154 (1957).
- [14] Williams, F.A., Mechanisms of Fire Spread, *16th Symposium (Int.) on Combustion*, 1281-1294, The Combustion Institute, Pittsburgh (1976).

- [15] Hilado, C.J., Huttlinger, P.A., Smoldering Combustion: A Bibliography of Published Information, *J. Thermal Insulation* 2: 102-106 (1978).
- [16] Hilado, C.J., Huttlinger, P.A., Smoldering Combustion: A Bibliography of Published Information. Part 2, *J. Thermal Insulation* 4: 115-118 (1980).
- [17] Drysdale, D.D., Aspects of smoldering combustion, *Fire Prevention Sci. Tech.* 23: 18-28 (1980).
- [18] Braunschädel, W., Schwelende Verbrennung und Übergang zur Entflammung, Dissertation, RWTH Aachen, Fortschritt-Berichte VDI, Reihe 3, Nr. 301, VDI-Verlag, Düsseldorf (1992).
- [19] Wagner, T., Literatur-Recherche zum Stand der Schwelbrandforschung, Studienarbeit am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1991).
- [20] Chan, T.K., Napier, D.H., Smoldering and ignition of cotton fibres and dust, *Fire Prevention Sci. Tech.* 4: 13-23 (1973).
- [21] Ohlemiller, T.J., Rogers, F.E., Cellulosic Insulation Material, II. Effect of Additives on some Smolder Characteristics, *Combust. Sci. and Tech.* 24: 139-152 (1980).
- [22] Moussa, N.A., Toong, T.Y., Garris, C.A., Mechanism of Smoldering of Cellulosic Materials, *16th Symposium (Int.) on Combustion*, 1447-1457, The Combustion Institute, Pittsburgh (1976).
- [23] Ortiz-Molina, M.G., Toong, T.Y., Moussa, N.A., Tesoro, G.C., Smoldering Combustion of Flexible Polyurethane Foams and its Transition to Flaming or Extinguishment, *17th Symposium (Int.) on Combustion*, 1191-1200, The Combustion Institute, Pittsburgh (1978).
- [24] Lucca, D.A., An Investigation of Co-Current and Counter-Current Smoldering Combustion in Particulated Fuel Beds, Ph.D. Thesis, Princeton University (1979).
- [25] Takahashi, M., Mitani, T., Niioka, T., Combustion Experiment of Coked Sand Model [in Japanese], *20th Japanese Symposium on Combustion*, 389-391 (1982).
- [26] Niioka, T., Takahashi, M., Mitani, T., Combustion Experiment of Coked Sand Model (Continued) [in Japanese], *21st Japanese Symposium on Combustion*, 356-358 (1983).
- [27] Dosanjh, S., Peterson, J., Fernandez-Pello, A.C., Pagni, P.J., Buoyancy Effects on Smoldering Combustion, *Acta Astronautica* 13: 689-696 (1986).
- [28] Chen, Y., Kauffman, C.W., Sichel, M., Faugrat, J., Guo, Y., The Transition from Smoldering to Glowing to Flaming Combustion, Fall Meeting, The Combustion Institute, Eastern States Section, Pittsburgh (1989).
- [29] Sato, K., Sega, S., Smolder Spread in a Horizontal Layer of Cellulosic Powder, *Fire Safety Science - Proceedings of the 2nd Int. Symposium*, 87-96 (1985).

- [30] Sato, K., Sega, S., The Mode of Burning Zone Spread along Cylindrical Cellulosic Material, *J. Fire Sciences* 3: 26-34 (1985).
- [31] Sato, K., Sega, S., Mode of Burning Zone Spread in an Opposed Gas Flow, *Combust. Flame* 83: 146-154 (1991).
- [32] Ohlemiller, T.J., Lucca, D.A., An Experimental Comparison of Forward and Reverse Smolder Propagation in Permeable Fuel Beds, *Combust. Flame* 54: 131-147 (1983).
- [33] Ohlemiller, T.J., Smoldering Combustion Propagation Through a Permeable Horizontal Fuel Layer, *Combust. Flame* 81: 341-353 (1990).
- [34] Ohlemiller, T.J., Forced Smolder Propagation and the Transition to Flaming in Cellulosic Insulation, *Combust. Flame* 81: 354-365 (1990).
- [35] Newhall, J.L., Fernandez-Pello, A.C., Pagni, P.J., Experimental Observations of the Effect of Pressure and Buoyancy on Cellulose Co-current Smoldering, *Fire and Materials* 14: 145-150 (1989).
- [36] Torero, J.L., Kitano, M., Fernandez-Pello, A.C., Forward Smoldering of Polyurethane Foam, Fall Meeting, The Combustion Institute, Western States Section, Pittsburgh (1990).
- [37] Tse, S.D., Sanchez, C.G., Fernandez-Pello, A.C., Smoldering in the Presence of a Gas/Solid Interface and its Transition to Flaming, Fall Meeting, The Combustion Institute, Western States Section, Pittsburgh (1993).
- [38] Torero, J.L., Fernandez-Pello, A.C., Kitano, M., Opposed Forced Flow Smoldering of Polyurethane Foam, *Combust. Sci. and Tech.* 91: 95-117 (1993).
- [39] Torero, J.L., Fernandez-Pello, A.C., Kitano, M., Downward Smolder of Polyurethane Foam, *4th Int. Symposium on Fire Safety Science*, Ottawa, Canada (1994).
- [40] LeVan, S., Schaffer, E.L., Predicting Weight Loss from Smoldering Combustion in Cellulosic Insulation, *J. Thermal Insulation* 5: 229-244 (1982).
- [41] Sega, S., Sato, K., The Smoldering-Flaming Transition of Solid Materials - Effect of Ambient Mixture Flow Velocity, Joint International Conference, The Combustion Institute, Australia/New Zealand and Japanese Sections, Pittsburgh (1989).
- [42] Sega, S., Noda, K., Flash and Sound at the Transition from Smoldering to Flaming Spread, Work in progress, *23rd Symposium (Int.) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh (1990).
- [43] Leisch, S.O., Smoldering Combustion in Horizontal Dust Layers, Ph.D. Thesis, University of Michigan (1983).
- [44] Leisch, S.O., Kauffman, C.W., Sichel, M., Smoldering Combustion in Horizontal Dust Layers, *20th Symposium (Int.) on Combustion*, 1601-1610, The Combustion Institute, Pittsburgh (1984).

- [45] Torero, J.L., Fernandez-Pello, A.C., Upward Smolder of Polyurethane Foam, noch nicht veröffentlicht (1994).
- [46] Kinbara, T., Endo, H., Sega, S., Downward Propagation of Smoldering Combustion Through Solid Materials, *11th Symposium (Int.) on Combustion*, 525-531, The Combustion Institute, Pittsburgh (1966).
- [47] Adler, J., Herbert, D.M., Diffusion Controlled Smoulder Propagation Parallel to a Plane Surface, *SIAM J. Appl. Math.* **52**: 153-162 (1992).
- [48] Kerr, C.E., Diffusion-controlled smoulder propagation in a semi-infinite solid: A numerical solution, *IMA J. Appl. Math.* **48**: 149-162 (1992).
- [49] Ohlemiller, T.J., Smoldering combustion hazards of thermal insulation materials, National Bureau of Standards, Interim Report, NBSIR 81-2350 (1981).
- [50] Muramatsu, M., Umemura, S., Okada, T., A Mathematical Model of Evaporation-Pyrolysis Processes Inside a Naturally Smoldering Cigarette, *Combust. Flame* **36**: 245-262 (1979).
- [51] Summerfield, M., Ohlemiller, T.J., Sandusky, H.W., A Thermophysical Mathematical Model of Steady-Draw Smoking and Predictions of Overall Cigarette Behavior, *Combust. Flame* **33**: 263-279 (1978).
- [52] Ohlemiller, T.J., Bellan, J., Rogers, F., A Model of Smoldering Combustion Applied to Flexible Polyurethane Foams, *Combust. Flame* **36**: 197-215 (1979).
- [53] Kailasanath, K., Zinn, B.T., A Theoretical Investigation of the Smoldering Combustion of Porous Solids, *Fluids Eng. Conference*, Boulder, USA, June 1981, publ. by ASME, New York (1981).
- [54] Dosanjh, S.S., Pagni, P.J., Forced Countercurrent Smoldering Combustion, *Proceedings of the 1987 ASME-JSME Thermal Engineering Joint Conference*, publ. by ASME, New York (1987).
- [55] Dosanjh, S.S., Pagni, P.J., Fernandez-Pello, A.C., Forced Cocurrent Smoldering Combustion, *Combust. Flame* **68**: 131-142 (1987).
- [56] Moallemi, M.K., Zhang, H., Kumar, S., Numerical Modeling of Two-Dimensional Smoldering Process, *Combust. Flame* **95**: 170-182 (1993).
- [57] Kotowski, M.D., Gunn, R.D., Theoretical Aspects of Reverse Combustion in the Underground Gasification of Coal, Laramie Energy Research Center, Report LERC/RI-76/4, Laramie, Wyoming, USA (1976).
- [58] Winslow, A.M., Numerical Model of Coal Gasification in a Packed Bed, *16th Symposium (Int.) on Combustion*, 503-514, The Combustion Institute, Pittsburgh (1976).
- [59] Thorsness, C.B., Grens, E.A., Sherwood, A., A one-dimensional model for in situ coal gasification, Lawrence Livermore Laboratory, Report UCRL 52523 (1978).

- [60] Hobbs, M.L., Radulovic, P.T., Smoot, L.D., Modeling Fixed-Bed Coal Gasifiers, *AIChE Journal* **38**: 681-702 (1992).
- [61] Hobbs, M.L., Radulovic, P.T., Smoot, L.D., Prediction of effluent compositions for fixed-bed coal gasifiers, *Fuel* **71**: 1177-1194 (1992).
- [62] Embacher, E., Ein Beitrag zur zweidimensionalen instationären Simulation einer Feststoffbrennanlage, Dissertation, TU Graz (1989).
- [63] Raupenstrauch, H., Ein Beitrag zur Computersimulation reagierender Schütttschichten, Dissertation, TU Graz (1991).
- [64] Schenk, J.L., Mathematisches Modell für die Pyrolyse und Trocknung von Kohle in einem Vergaserschacht, Dissertation, TU Graz (1989).
- [65] Markowz, G., Numerische Simulation der Trocknung, Pyrolyse und Verbrennung eines Schüttgutes, Diplomarbeit am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1992).
- [66] Smoot, L.D., Smith, P.J., Coal Combustion and Gasification, Plenum Press, New York (1985).
- [67] Görner, K., Technische Verbrennungssysteme, Springer Verlag, Berlin (1991).
- [68] Mohiuddin, G.M., Zünd- und Löschvorgänge bei der Verbrennung einzelner Kohlenstoffpartikel, Dissertation, RWTH Aachen (1980).
- [69] Du, X., Annamalai, K., The Transient Ignition of Isolated Coal Particle, *Combust. Flame* **97**: 339-354 (1994).
- [70] Ha, M.Y., Choi, B.R., A Numerical Study on the Combustion of a Single Carbon Particle Entrained in a Steady Flow, *Combust. Flame* **97**: 1-16 (1994).
- [71] Chen, J.C., Taniguchi, M., Narato, K., Ito, K., Laser Ignition of Pulverized Coals, *Combust. Flame* **97**: 107-117 (1994).
- [72] Vlachos, D.G., Schmidt, L.D., Aris, R., Ignition and Extinction of Flames Near Surfaces: Combustion of  $H_2$  in Air, *Combust. Flame* **95**: 313-335 (1993).
- [73] Williams, W.R., Stenzel, M.T., Song, X., Schmidt, L.D., Bifurcation Behavior in Homogeneous - Heterogeneous Combustion: I. Experimental Results Over Platinum, *Combust. Flame* **84**: 277-291 (1991).
- [74] Song, X., Williams, W.R., Schmidt, L.D., Aris, R., Bifurcation Behavior in Homogeneous - Heterogeneous Combustion: II. Computations for Stagnation-Point Flow, *Combust. Flame* **84**: 292-311 (1991).
- [75] Song, X., Schmidt, L.D., Aris, R., The Ignition Criteria for Stagnation-Point Flow: Semenov - Frank-Kamenetski or van't Hoff, *Combust. Sci. and Tech.* **75**: 311-331 (1991).

- [76] Amos, B., Fernandez-Pello, A.C., Model of the Ignition and Flame Development on a Vaporizing Combustible Surface in a Stagnation Point Flow: Ignition by Vapor Fuel Radiation Absorption, *Combust. Sci. and Tech.* **62**: 331-343 (1988).
- [77] Di Blasi, C., Crescitelli, S., Russo, G., Cinque, G., Numerical Model of Ignition Processes of Polymeric Materials Including Gas-Phase Absorption of Radiation, *Combust. Flame* **83**: 333-344 (1991).
- [78] Phuoc, T.X., Mathur, M.P., Ekmann, J.M., High-Energy Nd-Yag Laser Ignition of Coals: Experimental Observations, *Combust. Flame* **93**: 19-30 (1993).
- [79] Phuoc, T.X., Mathur, M.P., Ekmann, J.M., Durbetaki, P., High-Energy Nd-Yag Laser Ignition of Coals: Modeling Analysis, *Combust. Flame* **94**: 349-362 (1993).
- [80] Adomeit, G., Hocks, W., Henriksen, K., Combustion of a Carbon Surface in a Stagnation Point Flow Field, *Combust. Flame* **59**: 273-288 (1985).
- [81] Henriksen, K., Anwendung asymptotischer Methoden auf die Verbrennung einer angeströmten Kohlenstoffoberfläche, Dissertation, RWTH Aachen (1987).
- [82] Howard, J.B., Williams, G.C., Fine, D.H., Kinetics of Carbon Monoxide Oxidation in Postflame Gases, *14th Symposium (Int.) on Combustion*, 975-986, The Combustion Institute, Pittsburgh (1973).
- [83] Adomeit, G., Mohiuddin, G., Peters, N., Boundary Layer Combustion of Carbon, *16th Symposium (Int.) on Combustion*, 731-743, The Combustion Institute, Pittsburgh (1976).
- [84] Matsui, K., Koyama, A., Uehara, K., Fluid-Mechanical Effects on the Combustion Rate of Solid Carbon, *Combust. Flame* **25**: 57-66 (1975).
- [85] Matsui, K., Tsuji, H., Makino, A., The Effects of Water Vapor Concentration on the Rate of Combustion of an Artificial Graphite in Humid Air Flow, *Combust. Flame* **50**: 107-118 (1983).
- [86] Visser, W., Verbrennung einer umströmten Graphitoberfläche, Dissertation, RWTH Aachen (1984).
- [87] Visser, W., Adomeit, G., Experimental Investigation of the Ignition and Combustion of a Graphite Probe in Cross Flow, *20th Symposium (Int.) on Combustion*, 1845-1851, The Combustion Institute, Pittsburgh (1984).
- [88] Schlichting, H., Grenzschicht-Theorie, Verlag Braun, Karlsruhe, 3.Aufl. (1958).
- [89] Bird, R.B., Stewart, W.E., Lightfoot, E.N., Transport Phenomena, Wiley, New York (1960).
- [90] Kuo, K.K., Principles of Combustion, Wiley, New York (1986).
- [91] Dorrance, W.H., Viscous Hypersonic Flow, McGraw-Hill, New York (1962).

- [92] Chung, P.M., Chemically Reacting Nonequilibrium Boundary Layers, in: Hartnett, J.P., Irvine, T.F., *Advances in Heat Transfer* 2, 109-270, Academic Press, New York (1965).
- [93] Sharma, O.P., Sirignano, W.A., Ignition of Stagnation Point Flow by a Hot Body, *Combust. Sci. and Tech.* 1: 95-104 (1969).
- [94] Lees, L., Laminar Heat Transfer Over Blunt-Nosed Bodies at Hypersonic Flight Speeds, *Jet Propulsion* 26: 259-274 (1956).
- [95] Gokhale, S.S., Krier, H., Modeling of Unsteady Two-Phase Reactive Flow in Porous Beds of Propellant, *Prog. Energy Combust. Sci.* 8: 1-39 (1982).
- [96] Cheng, P., Heat Transfer in Geothermal Systems, in: Irvine, T.F., Hartnett, J.P., *Advances in Heat Transfer* 14, 1-105, Academic Press, New York (1978).
- [97] Grassmann, P., *Physikalische Grundlagen der Verfahrenstechnik*, Verlag Sauerländer, Aarau, 2.Aufl. (1970).
- [98] Szekely, J., Evans, J.W., Sohn, H.Y., *Gas-Solid Reactions*, Academic Press, New York (1976).
- [99] Ergun, S., Fluid Flow Through Packed Columns, *Chem. Eng. Progress* 48: 89-94 (1952).
- [100] Kuo, K.K., Summerfield, M., High Speed Combustion of Mobile Granular Solid Propellants: Wave Structure and the Equivalent Rankine-Hugoniot Relation, *15th Symposium (Int.) on Combustion*, 515-527, The Combustion Institute, Pittsburgh (1974).
- [101] Kuo, K.K., Summerfield, M., Theory of Steady-State Burning of Gas-Permeable Propellants, *AIAA Journal* 12: 49-56 (1974).
- [102] Stanek, V., Szekely, J., The Effect of Non-Uniform Porosity in Causing Flow Maldistributions in Isothermal Packed Beds, *Canadian J. Chem. Eng.* 50: 9-14 (1972).
- [103] Di Blasi, C., Modeling and Simulation of Combustion Processes of Charring and Non-Charring Solid Fuels, *Prog. Energy Combust. Sci.* 19: 71-104 (1993).
- [104] Laurs, A., Numerische Simulation des Abbrands eines angeströmten Schüttgutes, Diplomarbeit am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1993).
- [105] Patankar, S.V., *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Hemisphere, Washington, McGraw-Hill, New York (1980).
- [106] Spalding, D.B., The Theory of Flame Phenomena with a Chain Reaction, *Phil. Trans. Roy. Soc. London A* 249: 1-23 (1956).
- [107] Margolis, S.B., Time-Dependent Solution of a Premixed Laminar Flame, *J. Comput. Phys.* 27: 410-427 (1978).

- [108] Van Doormaal, J.P., Raithby, G.D., Enhancements of the SIMPLE Method for Predicting Incompressible Fluid Flows, *Numerical Heat Transfer* 7: 147-163 (1984).
- [109] Patankar, S.V., A Calculation Procedure for Two Dimensional Elliptic Situations, *Numerical Heat Transfer* 14: 409-425 (1985).
- [110] Jang, D.S., Jetli, R., Acharya, S., Comparison of the PISO, SIMPLER, and SIMPLEC Algorithms for the Treatment of the Pressure-Velocity Coupling in Steady Flow Problems, *Numerical Heat Transfer* 10: 209-228 (1986).
- [111] Wanik, A., Schnell, U., Some Remarks on the PISO and SIMPLE Algorithms for Steady Turbulent Flow Problems, *Computers & Fluids* 17: 555-570 (1989).
- [112] Fell, S., Numerische Untersuchung der Verbrennung einer angeströmten Kohlenstoffoberfläche unter Berücksichtigung einer detaillierten Kinetik in der Gasphase, Studienarbeit am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1988).
- [113] Rogg, B., Adaptive methods in computational fluid dynamics of chemically reacting flows, *Computer Meth. in Appl. Mechanics and Eng.* 90: 659-670 (1991).
- [114] Weitzel, J., Adaptive Gittertechnik bei der numerischen Simulation von Verbrennungen, Studienarbeit am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1991).
- [115] Weitzel, J., Zeitschrittsteuerung, Interner Bericht am Institut für Allgemeine Mechanik, RWTH Aachen (1992).
- [116] Kulkarni, A.K., Kumar, M., Kuo, K.K., Review of Solid Propellant Ignition Studies, AIAA Report 80-1210, *AIAA/SAE/ASME 16th Joint Propulsion Conference*, Hartford, Connecticut (1980).
- [117] Alkidas, A., Durbetaki, P., Ignition of a gas mixture by a heated surface, *Combust. Sci. and Tech.* 7: 135-140 (1973).
- [118] Semenov, N., Chemical Kinetics and Chain Reactions, Oxford University Press, London (1935).
- [119] Frank-Kamenetskii, D.A., Diffusion and Heat Exchange in Chemical Kinetics, Princeton University Press, Princeton (1955).
- [120] Gray, P., Lee, P.R., Thermal explosion theory, *Oxidation and Combustion Reviews* 2: 1 (1967).
- [121] Vilyunov, V.N., Zarko, V.E., Ignition of Solids, Elsevier, New York (1989).
- [122] Thomas, P.H., Bowes, P.C., Thermal Ignition in a Slab with one Face at a Constant High Temperature, *Trans. Farad. Soc.* 57 Part II: 2007-2017 (1961).
- [123] Brenner, H., The diffusion model of longitudinal mixing in beds of finite length. Numerical values, *Chem. Eng. Sci.* 17: 229-243 (1962).

- [124] Johnson, B.M., Froment, G.F., Watson, C.C., Temperature profiles in packed beds of catalyst during regeneration, *Chem. Eng. Sci.* **17**: 835-848 (1962).
- [125] Ramshaw, J.D., O'Rourke, P.J., Stein, L.R., Pressure Gradient Scaling Method for Fluid Flow with Nearly Uniform Pressure, *J. Comput. Phys.* **58**: 361-376 (1985).

## 8 Anhang

### 8.1 Verifikation des Modells für die Staupunktströmung

Die Erhaltungsgleichungen für die Staupunktanströmung werden in Kapitel 3.1 genannt. Um die Modellierung und das numerische Verfahren für das Teilsystem der Anströmung zu verifizieren, wurde dieser Teil separat getestet, ohne mit der Schüttung gekoppelt zu sein. Stattdessen wurde der Abbrand einer geschlossenen Kohlenstoffoberfläche berechnet; die entsprechenden Randbedingungen sind in [80] genannt und stellen einen Grenzfalle der in Kapitel 3.3 genannten Randbedingungen dar ( $\phi=0$ ). Der Fall des Abbrandes einer Kohlenstoffoberfläche in einer Staupunktströmung wurde bereits von Henriksen berechnet [7, 80], wobei er ein Schießverfahren, nicht den PISO-Algorithmus, als Lösungsmethode benutzte. Henriksen verglich seine numerischen Ergebnisse mit experimentellen Werten von Matsui et al. [84, 85]. Es zeigte sich eine gute Übereinstimmung. Daher sollen zur Verifikation des in der vorliegenden Arbeit benutzten Modells und numerischen Verfahrens die Ergebnisse für den Abbrand einer Kohlenstoffoberfläche mit den Ergebnissen von Henriksen in [7, 80] verglichen werden.

Die Ergebnisse bei Henriksen lassen sich in drei große Gruppen unterteilen: (a) Massenabbrand  $\dot{m}$  aufgetragen über der Wandtemperatur  $T_w$ . (b) Temperatur- und Konzentrationsprofile aufgetragen über dem Ort. (c) Wandtemperatur  $T_w$  aufgetragen über dem

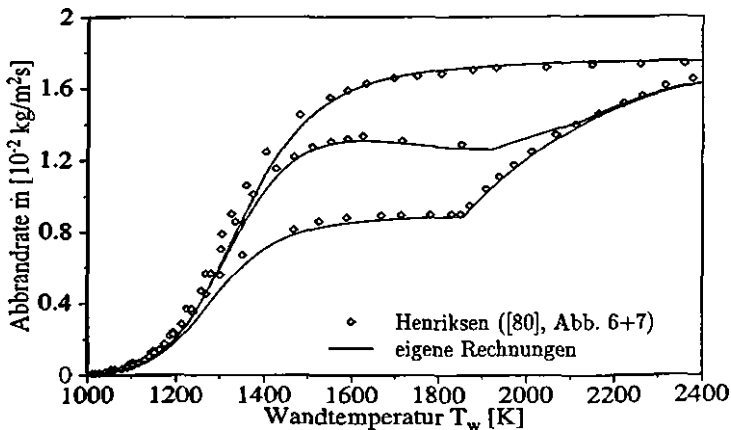


Abbildung 8.1: Abbrandrate  $\dot{m}$  in Abhängigkeit der Wandtemperatur  $T_w$  (nur Staupunktströmung, keine Kopplung mit der Schüttung) für eine endliche homogene Reaktionsrate (Mitte) und die Grenzfälle der eingefrorenen homogenen Reaktion (oben) und der unendlich schnellen homogenen Reaktion (unten)

zugeführten externen Wärmestrom  $\dot{q}$ . Zu jeder dieser Gruppen werden typische Ergebnisse gezeigt.

Abbildung 8.1 zeigt den Massenabbrand der Kohlenstoffoberfläche  $\dot{m}$  über der Wandtemperatur  $T_w$ . Die Symbole zeigen die Ergebnisse aus [80] für drei verschiedene Fälle: Die obere Kurve gibt den Verlauf für den Grenzfall der eingefrorenen homogenen Reaktion in der Gasphase wieder – es laufen nur die heterogenen Reaktionen an der Oberfläche ab. Die untere Kurve ist das Ergebnis für den Grenzfall der unendlich schnellen homogenen Reaktion. Der Knick in dieser Kurve markiert das Ablösen der Flamme von der Wand. Zwischen diesen beiden Grenzfällen liegt der Fall der endlich schnellen homogenen Reaktion, die mittlere Kurve gibt diese Ergebnisse wieder. Die durchgezogenen Linien zeigen die Werte, die mit dem Modell und dem modifizierten PISO-Algorithmus im Rahmen dieser Arbeit berechnet wurden. Für alle drei Kurven zeigt sich eine gute Übereinstimmung. (Die geringfügigen Abweichungen können mehrere Ursachen haben: Nicht vollkommen übereinstimmende Voraussetzungen in den Modellen, Ungenauigkeiten beim Auslesen der Ergebnisse von Henriksen aus den Abbildungen in [80], u.a.).

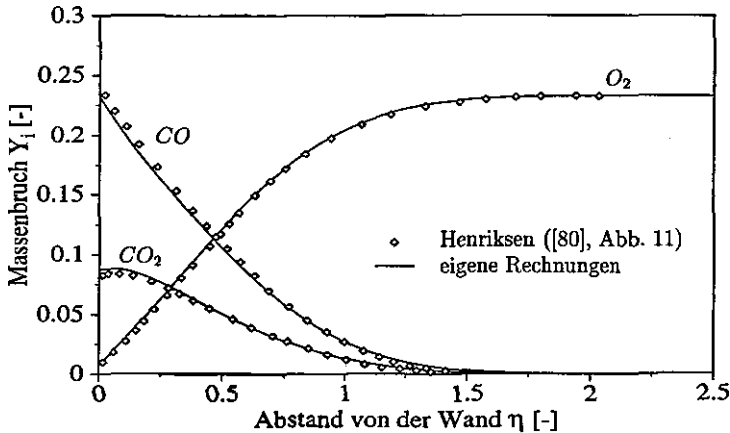


Abbildung 8.2: Verlauf des Massenbruchs  $Y_i$  der Komponenten  $O_2$ ,  $CO$  und  $CO_2$  über der dimensionslosen Grenzschichtkoordinate  $\eta$  (nur Staupunktströmung, keine Kopplung mit der Schüttung)

Abbildung 8.2 zeigt die Profile der Massenbrüche von  $O_2$ ,  $CO$  und  $CO_2$  über der Grenzschichtkoordinate  $\eta$ . Wiederum stellen die Symbole die Ergebnisse aus [80] dar, die durchgezogenen Linien markieren die neuen Berechnungen. Für die drei Komponenten ergibt sich eine gute Übereinstimmung.

In Abbildung 8.3 werden Temperaturprofile über der Grenzschichtkoordinate  $\eta$  für verschiedene Wandtemperaturen mit Ergebnissen aus [7] verglichen. Auch diese Kurven sind nahezu identisch.

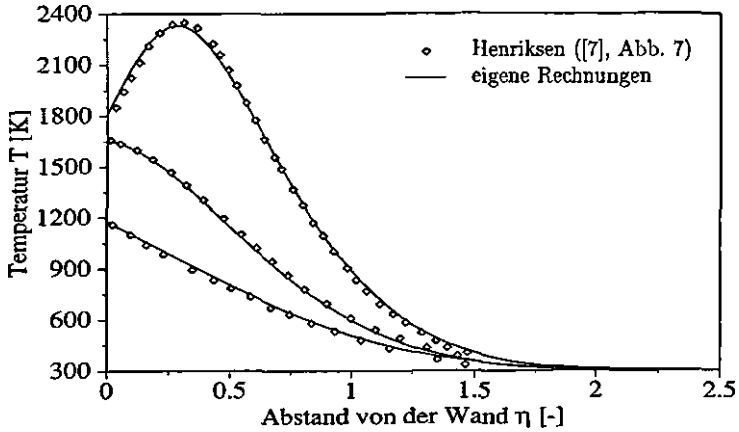


Abbildung 8.3: Verlauf der Temperatur über der dimensionslosen Grenzschichtkoordinate  $\eta$  für drei verschiedene Wandtemperaturen  $T_w$  (nur Staupunktströmung, keine Kopplung mit der Schüttung)

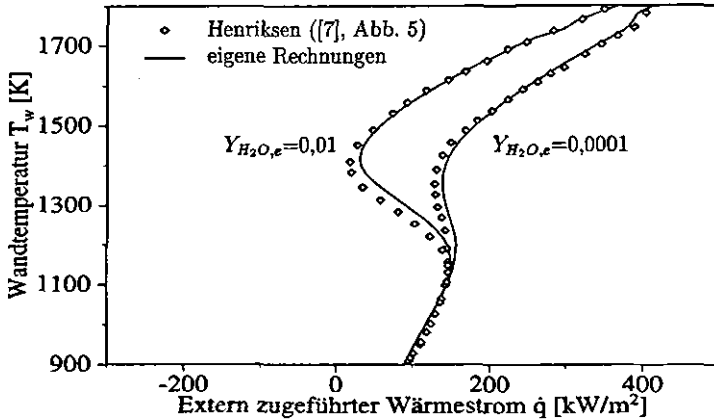


Abbildung 8.4: Wandtemperatur  $T_w$  in Abhängigkeit eines externen Wärmestroms  $\dot{q}$  zur Wand für zwei verschiedene Wasserdampfkonzentrationen in der Anströmung (nur Staupunktströmung, keine Kopplung mit der Schüttung)

Das letzte Bild im Rahmen dieser Vergleiche für die Staupunktströmung zeigt die Wandtemperatur  $T_w$  als Funktion des externen Wärmestroms zur Oberfläche  $\dot{q}$  (Abb. 8.4). Der S-förmige Verlauf der Kurven zeigt, daß bei bestimmten Werten von  $\dot{q}$  ein Zünden bzw. Verlöschen der Reaktionen eintritt. Für die  $\dot{q}$ -Werte, die zwischen  $\dot{q}_{\text{Llöschen}}$  und  $\dot{q}_{\text{Zünden}}$  liegen, ergeben sich mehrere Lösungen für  $T_w$ . Das Berechnen von Zünd- und Löschcharakteristiken bei einer angeströmten Schüttung ist Inhalt dieser Arbeit. Die mit dem modifizierten PISO-Verfahren berechneten Werte stimmen gut überein mit den Ergebnissen aus [7]. Dies zeigt, daß sich das gewählte numerische Verfahren zur Berechnung von Zünd- und Löschvorgängen eignet.

Durch die Berechnung des Abbrandes einer angeströmten Kohlenstoffoberfläche wurde das Teilprogramm der Anströmung verifiziert. Die Ergebnisse zeigen, daß das Modell und das numerische Verfahren Ergebnisse anderer Autoren korrekt wiedergeben und sich auch dazu eignen, Zündprozesse mit den sich möglicherweise ergebenden Mehrfachlösungen zu berechnen.

## 8.2 Verifikation des Modells für die Schüttung

Die Erhaltungsgleichungen für das Teilsystem der Schüttung werden in Kapitel 3.2 genannt. Um das Modell und das numerische Verfahren für dieses Teilsystem separat zu testen, wurden zahlreiche Testrechnungen sowohl für die Gleichungen in ihrer komplexen Form als auch unter Benutzung von Vereinfachungen durchgeführt [104]. Die Ergebnisse von zwei dieser Testfälle, der inerten Aufheizung einer Schüttung durch einen warmen Gasstrom und der Strömung durch eine Schüttung unter Berücksichtigung einer heterogenen Reaktion, sind hier dargestellt.

Bei der inerten Aufheizung wird zugrunde gelegt, daß die Schüttung anfangs eine gleichmäßige Temperatur hat und dann durch einen durchströmenden, warmen Gasstrom mit konstanter Eintrittstemperatur aufgeheizt wird. Chemische Reaktionen sollen nicht ablaufen. Für diesen instationären Aufheizvorgang gibt es unter der Voraussetzung  $T_g = T_p$  und einigen anderen Vereinfachungen eine analytische Lösung [59, 104, 123].

Abbildung 8.5 zeigt für einen bestimmten Zeitpunkt ( $t=88$  s) einen Vergleich von numerisch und analytisch berechnetem Temperaturverlauf über der Schüttungslänge. Die Abweichung zwischen den Verläufen ist an keiner Stelle größer als 5%. Dies stellt eine sehr gute Übereinstimmung dar, wenn man berücksichtigt, daß die analytische Lösung sehr vielen Einschränkungen unterworfen ist. Nicht alle dieser Einschränkungen wurden im Programm berücksichtigt, um noch relativ nahe am ursprünglichen Modell für die Schüttung bleiben zu können.

Die Strömung und der Wärmetransport in der Schüttung werden, wie Abbildung 8.5 zeigt, durch das Programm gut erfaßt. Zusätzlich sollte auch die Simulation von chemischen Reaktionen getestet werden. Dazu wurde folgender Testfall berechnet: Eine Schüttung besteht zu großen Teilen bereits aus Asche, beinhaltet aber auch noch Kohlenstoff. Die sich anfangs bei einer gleichmäßigen Temperatur befindende Schüttung wird von einem warmen Gasstrom (Stickstoff-Sauerstoff-Gemisch) mit konstanter Eintrittstemperatur durchströmt. Dabei läuft die Reaktion  $C + O_2 \rightarrow CO_2 + \text{Asche}$  ab. Berechnet werden für

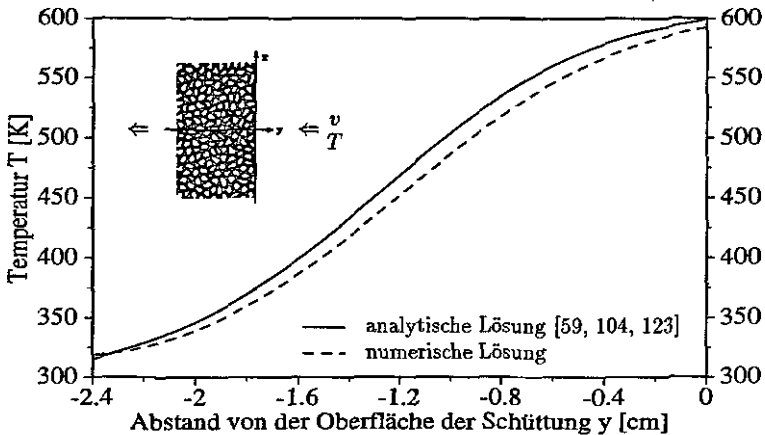


Abbildung 8.5: Aufheizung einer Schüttung durch einen warmen Gasstrom (nur Schüttung, keine Kopplung mit der Anströmung)

diesen instationären Prozeß die Temperatur- und Konzentrationsprofile über der Schüttungslänge. Eine analytische Lösung [59, 104, 124] existiert für diesen Fall nur unter drei Voraussetzungen: (1)  $\rho$ ,  $v$  und  $p$  müssen konstant sein. (2) Die Einflüsse von Wärmeleitung und Diffusion werden vernachlässigt. (3) Die Reaktionsrate ist unabhängig von der Temperatur. Diese Voraussetzungen und ein paar zusätzliche Vereinfachungen sind gravierend und für reale Prozesse nicht zutreffend. Trotzdem ist es sinnvoll, diesen Testfall zu berechnen, da er die Möglichkeit bietet, die numerischen Ergebnisse für einen relativ umfassenden Prozeß in der Schüttung einer vergleichbaren analytischen Lösung gegenüberzustellen.

Abbildung 8.6 zeigt für einen bestimmten Zeitpunkt ( $t=1,2$  s) das Verhältnis der Massenbrüche von Kohlenstoff bzw. Sauerstoff zu ihren Anfangswerten. Die analytische und die numerische Lösung sind identisch. Diese Übereinstimmung war erwartet worden, da für die Konzentrationsberechnung die Voraussetzung für die analytische Lösung und im Programm gleich sind (die Diffusion spielt bei der betrachteten Strömungsgeschwindigkeit keine Rolle).

Das Temperaturprofil für denselben Fall ist in Abbildung 8.7 dargestellt. Hier zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der beiden Lösungen mit Ausnahme des Bereichs des Temperaturmaximums. Dies kommt durch die Vernachlässigung der Wärmeleitung in der analytischen Lösung. Bei der numerischen Berechnung wurde der Wärmeleitungsterm berücksichtigt, was zu einer Erniedrigung und Abrundung des Temperaturmaximums führt. Durch die Vernachlässigung dieses Terms auch im Programm erreicht man eine bessere Übereinstimmung der Kurven im Bereich des Temperaturmaximums; durch das steile Maximum und den nicht differenzierbaren Verlauf der analytischen Lösung an dieser

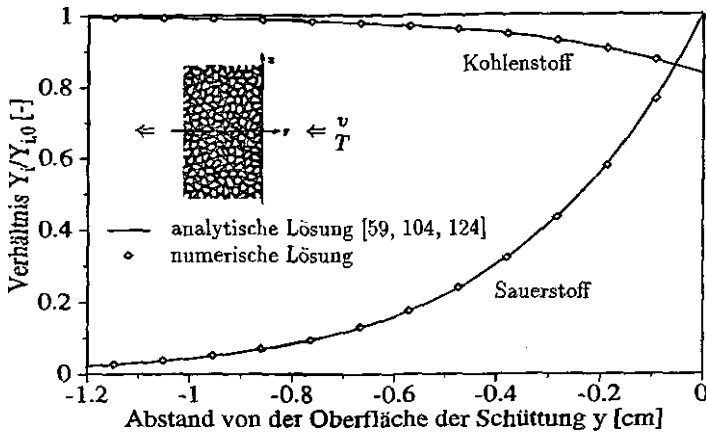


Abbildung 8.6: Verhältnis der Konzentrationen von  $C$  und  $O_2$  zu ihren Anfangskonzentrationen als Funktion des Ortes für den Fall einer durchströmten Schüttung mit einer heterogenen Reaktion (nur Schüttung, keine Kopplung mit der Anströmung)

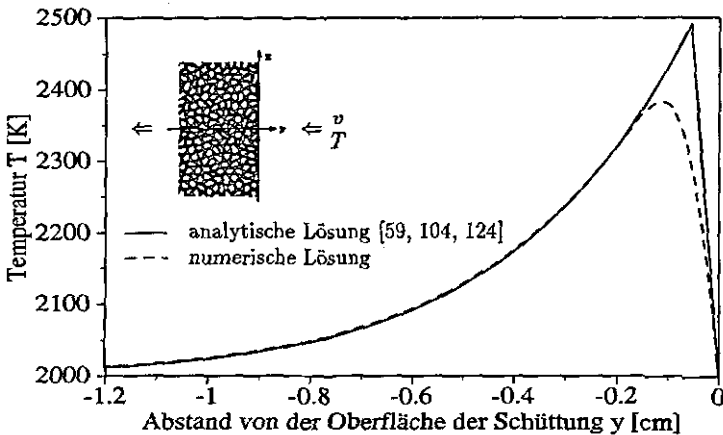


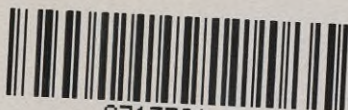
Abbildung 8.7: Temperaturverlauf in der Schüttung als Funktion des Ortes für den Fall einer durchströmten Schüttung mit einer heterogenen Reaktion (nur Schüttung, keine Kopplung mit der Anströmung)

Stelle kommt es aber zu numerischen Problemen bezüglich der Gitterauflösung.

Aufgrund der Ergebnisse in den vorgestellten Testrechnungen kann man davon ausgehen, daß das aufgestellte Modell und das gewählte numerische Verfahren geeignet sind, die in der Schüttung ablaufenden Prozesse zu beschreiben bzw. zu berechnen.

Diese Seite enthält personenbezogene Daten und wurde daher nicht digitalisiert.

SZ13301=2



SZ13301=2

ISBN 3-8265-0780-0

