

Kapitel 1

Einleitung

Heterogene Reaktionen, also Reaktionen zwischen Stoffen in verschiedenen Phasen, insbesondere zwischen Gasen und Feststoffen, treten z.B. bei der Kohlestaubverbrennung, bei der Rußverbrennung zur motorischen Abgasnachbehandlung oder bei der Festbettverbrennung auf. Sie spielen ungewollt bei Staubexplosionen in Bergwerken oder Getreidesilos eine wichtige Rolle. Bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe entsteht eine Reihe unerwünschter Produkte, zu denen wegen befürchteter Auswirkungen auf die Erwärmung der Atmosphäre auch das unvermeidliche Kohlendioxid (CO_2) gezählt wird. Um diese Prozesse möglichst effizient und umweltschonend zu führen bzw. um die Prozesse unter sicherheitstechnischen Aspekten gegebenenfalls zu verhindern, ist eine detaillierte Kenntnis der Abläufe der entsprechenden homogenen und heterogenen Reaktionen und der in den jeweiligen Anwendungen relevanten physikalischen Effekte hilfreich. Viele grundlegende Untersuchungen von Verbrennungsvorgängen, bei denen sich im allgemeinen chemische Reaktionen und Strömung überlagern, wurden in den letzten Jahren aufgrund der rasant gewachsenen Rechengeschwindigkeit von Computeranlagen verstärkt mit Hilfe von Rechenmodellen durchgeführt. Sie erfordern unter anderem verallgemeinerbare Angaben über die Geschwindigkeit von chemischen Reaktionen. Für einige technisch relevante Reaktionsvorgänge zwischen gasförmigen Stoffen liegen diese Informationen vor und sind auch auf andere Umgebungsbedingungen und Zustände (Druck, Temperatur, stoffliche Zusammensetzung) verallgemeinerbar. Dementsprechend wurde in den letzten Jahren eine große Anzahl von Untersuchungen zu grundlegenden Verbrennungsphänomenen in homogenen Gasgemischen durchgeführt.

Für Reaktionen zwischen Gasen und Feststoffen ist die Datenlage deutlich schlechter. Hinzu kommt, daß bei den heterogenen Reaktionen die Oberflächenbeschaffenheit des Feststoffes eine entscheidende Rolle spielt. Sie kann auch bei zwei Partikeln derselben Stoffart sehr unterschiedlich sein und nur schwer gemessen werden. Zusätzlich werden die Verbrennungsvorgänge durch die Strömung der Gase und Feststoffe beeinflusst, die

wiederum durch Kraftwirkungen zwischen Gasen und Feststoffpartikeln kompliziert werden.

Trotz der großen praktischen Bedeutung der heterogenen Verbrennung, z.B. beim Dieselmotor, bleibt die Zahl der Untersuchungen zu diesem Thema relativ klein. Für spezielle Fälle von Verbrennungswellen in Gas/Partikel-Gemischen wie z.B. Staubexplosionen wurden experimentelle Untersuchungen u.a. von Proust und Veysseyre (1988) [1], Austin et al. (1993) [2], Peraldi et al. (1993) [3] und Lebecki et al. (1993) [4] durchgeführt. Eine systematische Betrachtung der Modellierung von Gas/Partikel-Reaktionen wurde 1986 von Baer und Nunziato [5] in Bezug auf granulare Materialien und 1988 von Igra und Ben-Dor [6] in Bezug auf Stoßwellen in staubbeladenen Strömungen durchgeführt. Sirignano (1993) [7] gibt einen Überblick über verschiedene Modellierungen für Gas/Partikel-Gemische, mit Schwerpunkten auf der Fluidodynamik von Sprays und auf Verdampfungsprozessen. Die mathematische Struktur von Rechenmodellen für Zweiphasenströmungen wurde z.B. von Stuhmiller (1977) [8] oder Embid und Baer (1992) [9] untersucht.

Eine allgemeingültige Beschreibung von Reaktionen in Gas/Partikel-Gemischen ist mit der heutigen Datenlage und den vorhandenen Rechnerressourcen nicht möglich, sodaß in allen Untersuchungen vereinfachte Modelle verwendet werden. Vielfach setzen diese Vereinfachungen bei den Reaktionsmodellen an, die auf wenige Reaktionsschritte reduziert werden, oder es erfolgt eine Beschränkung auf die stationären Bilanzgleichungen (z.B. Krazinski et al. (1979) [10], Sichel (1991) [11], Khasainov und Veysseyre (1994) [12] oder Ha und Choi (1994) [13]). Krishenik et al. (1994) konzentrierten ihre Arbeit beispielsweise auf den Wärmetransport zwischen den beiden Phasen, wobei sie Gas und Partikel als in Ruhe befindlich betrachten und ein 1-Schritt-Modell für die chemischen Reaktionen verwenden. Smirnov (1988) [14] bzw. Smirnov und Tyurnikov (1994) [15] verwenden ein instationäres Modell für Flammen und Detonationen in Gas/Partikel-Gemischen unter Vernachlässigung von Zähigkeit und Diffusion in der Gasphase. Fan und Sichel (1988) [16] modellieren die heterogenen Reaktionen genauer, Gas und Partikel werden aber zusammen als ein Fluid mit einem stationären Modell behandelt.

Eine Vereinfachung kann auch in der Formulierung des Zustandes der Partikelphase gesehen werden. In der Lagrange'schen Betrachtungsweise wird jedes Partikel als Individuum behandelt, während bei der Euler'schen Beschreibung die Partikel im Raum gleichverteilt angenommen werden, sodaß Gas und Partikel als zwei miteinander wechselwirkende Kontinua modelliert werden. Die Lagrangeform wird in der Regel für große Partikel verwendet (Tsuji et al. 1989 [17]). Ansonsten herrscht die Kontinuumsformulierung vor (Smirnov 1988 [14], Smirnov und Tyurnikov 1994 [15], Khasainov und Veysseyre 1994 [12], Fan und Sichel 1988 [16], Hayashi und Fuyuto 1989 [18]).

In der vorliegenden Arbeit wird anhand numerischer Modelle der Einfluß von reaktiven

Partikeln auf das Zünd- und Flammenausbreitungsverhalten in Gas/Partikel-Gemischen mit Partikelvolumenanteilen in der Größenordnung von $\epsilon = 10^{-4}$ und Partikeldurchmessern von 0,37 bis $37 \mu\text{m}$ untersucht. Die Partikelkonzentrationen liegen dann zwischen $3 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ und $3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$. Zur Modellierung der Partikelphase wird die Euler'sche Kontinuumsformulierung verwendet, da sie sich für Verbrennungsvorgänge mit den hier betrachteten hohen Partikelkonzentrationen und kleinen Partikelmassenanteilen, also kleinen Partikeln, als vorteilhaft erwiesen hat. Das Gesamtmodell besteht aus den Bilanzgleichungen für Masse, Impuls und Energie jeweils für Gase und Feststoff und wird ergänzt durch Schließungsansätze für die Transporteigenschaften, die Reaktionsquellterme und für die Austauschterme zwischen den Phasen. Für den Feststoff werden Reaktionsdaten von Kohlenstoffpartikeln verwendet.

Numerisch untersucht werden die Flammenentstehungs- und -ausbreitungsvorgänge in einem abgeschlossenen Gefäß, das mit H_2/O_2 oder CH_4/O_2 und Kohlenstoffpartikeln gefüllt ist, wie es schematisch in Abbildung 1.1 dargestellt ist. Mit Hilfe eines Wärmestrahlungs-

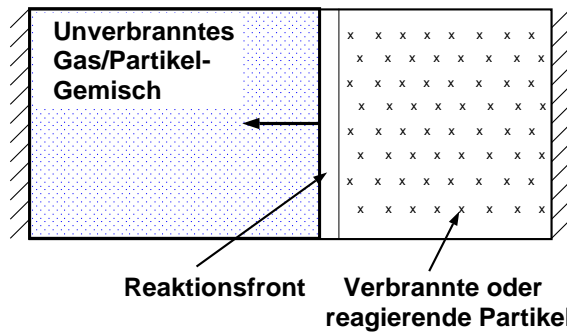


Abbildung 1.1: *Reaktionsfront, die sich in ein heterogenes Gemisch aus unverbranntem Gas und Partikeln (links) bewegt. Hinter der Reaktionsfront (rechts) bleibt ein Gemisch aus verbrannten Gasen und verbrannten bzw. evtl. weiterreagierenden Partikeln zurück.*

modells werden schließlich die Wechselwirkungen zwischen strahlenden Gaskomponenten und Partikeln nachgebildet und ihre Auswirkungen auf das Reaktionsverhalten der untersuchten Gas/Partikel-Gemische bewertet.