



Offen im Denken

Abschlussbericht

der Forschungsstelle(n)

- 1, GWI - Gas- und Wärme-Institut Essen e.V.
- 2, Ruhr-Universität Bochum, Lehrstuhl für Strömungsmechanik
- 3, Universität Duisburg Essen, Lehrstuhl für Fluidodynamik
- 4, Universität Siegen, Lehrstuhl für Technische Thermodynamik

zu dem über die



im Rahmen des Programms zur

Förderung der Industriellen Gemeinschaftsforschung und -entwicklung (IGF)
vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie
aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages
geförderten Vorhaben **IGF-Nr. 17838 N**

Verbesserung der mathematischen Modellierung von Oxy-Fuel-Feuerungsprozessen in der thermischen Verfahrenstechnik (O₂-HTVT)

(Bewilligungszeitraum: 01.09.2013 - 30.11.2015)

der AiF-Forschungsvereinigung

Gaswärme

Autoren:

Jörg Leicher, Anne Giese – Gas- und Wärme-Institut Essen e.V.

Valentin Bomba, Bernd Rogg, Ruhr-Universität Bochum

Patrick Wollny, Irenäus Wlokas, Andreas Kempf, Universität Duisburg-Essen

Johannes W. Träger, Thomas Seeger, Universität Siegen, Lehrstuhl für Technische Thermodynamik

Geschäftsführender Vorstand: Dr.-Ing. Rolf Albus
Wissenschaftlicher Vorstand: Prof. Dr.-Ing. habil. Klaus Görner
Verwaltungsratsvorsitzender: Dipl.-Ing. Dietmar Bückemeyer

Sparkasse Essen
BLZ: 360 501 05
Konto-Nr.: 208 033
IBAN: DE12 3605 0105 0000 2080 33
SWIFT CODE: SPESDE3E

Registergericht: Amtsgericht Essen
Registernummer: GWI Allg. II 1691
Steuer-Nr.: 5110/5758/0266
USt.-ID.: DE 119655769



Inhaltsverzeichnis:

Inhaltsverzeichnis:.....	2
1. Zusammenfassung	4
2. Wissenschaftlich-technische und wirtschaftliche Aufgabenstellung	5
2.1 Anlass für den Forschungsantrag / Ausgangssituation / Stand der Forschung	5
3. Forschungsziel / Forschungsergebnisse / Lösungsweg	16
3.1. Forschungsziel	16
3.2. Forschungsergebnisse	17
3.2.1 Angestrebte Forschungsergebnisse	17
3.2.2 Innovativer Beitrag der angestrebten Forschungsergebnisse	17
3.3. Lösungsweg zur Erreichung des Forschungsziels.....	18
4. Grundlagen der Verbrennungsmodellierung in CFD	20
4.1. Verbrennungsmodellierung	22
4.1.1. Wirbelzerfallsmodelle.....	22
4.1.2. Tabellenbasierte Verbrennungsmodelle	24
5. Experimentelle Grundlagen	28
5.1. Semi-industrieller Brennerprüfstand am GWI.....	28
6. Modellentwicklung für Oxy-Fuel-Verbrennungsvorgänge	31
6.1. Entwicklung stark reduzierter Reaktionsmechanismen für die Beschreibung von Oxy-Fuel-Flammen	31
6.1.1. Choice of suitable detailed reaction mechanism for oxy-fuel combustion	31
6.1.2. Development of a reduced reaction mechanism for oxy-fuel combustion.....	34
6.1.3. Performance of the skeletal mechanism	39
6.1.3.4. Results of the reduced mechanism	40
6.1.3.5. 12-step reduced mechanism with 17 species.....	42
6.2. Entwicklung von nicht-adiabaten Flamelet-Modellen für die Oxy-Fuel-Verbrennung	44
6.2.1. Wärmeverluste in der Flamelet-Modellierung	46
6.2.2. Ergebnisse des adiabaten Falls „Sandia Flame D“	48
6.2.3. Testfälle OXYFLAM A und B der International Flame Research Foundation (IFRF)	51
6.2.3.4. Implementierung der Modelle in FLUENT	58
6.3. Simulationsaktivitäten beim GWI in Essen	60
6.3.1. OXYFLAM-II-Untersuchungen, Brenner A (IFRF).....	60
6.3.2. Simulation der O ₂ -Glaswanne-Messung	66
6.4. Simulation einer oxy-fuel-befeuerten Industrieofenanlage	68
7. Experimentelle Untersuchungen	69
7.1. Vorbereitung und Implementierung der CO- und O ₂ -Moleküldaten in die vorhandene Auswerte-Software.....	69
7.2. Messung der Temperaturverteilung über das CO- und das O ₂ -Molekül an einem CO/Luft-McKenna-Laborbrenner	70
7.3. Vorbereitung der Vibrations-CARS-Sonde für den Einsatz am Prüfstand	73
7.4. Erste Messkampagne am GWI-Hochtemperatur-Brennerprüfstand, Sommer 2014	74
7.5 Zweite Messkampagne am GWI-Hochtemperatur-Brennerprüfstand, Dezember 2014	79
8. Ausblick und offene Fragen.....	89
9. Projektplan	91
10. Nutzen der Forschungsergebnisse	95
10.1. Bisherige und für die Zukunft geplante Tätigkeiten zum Ergebnistransfer	95
10.2. Wissenschaftlich-technischer Nutzen	97

10.3. Wirtschaftlicher Nutzen für KMU	97
11. Veröffentlichungen	99
12. Danksagung	100
13. Literaturverzeichnis.....	101

1. Zusammenfassung

In vielen Bereichen der Hochtemperaturverfahrenstechnik findet die so genannte Oxy-Fuel-Verbrennungstechnik immer weitere Verbreitung, etwa in der metallverarbeitenden Industrie oder in der Glasindustrie. In der US-amerikanischen Glasindustrie z. B. sind bereits mehr als ein Viertel aller Glasschmelzwannen Oxy-Fuel-Anlagen.

Gleichzeitig gewinnt die Auslegung und Optimierung von thermoprozesstechnischen Anlagen mit Hilfe von CFD-Simulationen immer mehr an Bedeutung. Getrieben auch durch die stetig steigenden verfügbaren Rechenkapazitäten zu geringen Kosten werden Simulationen sowohl für Design und Optimierung, aber auch für das Troubleshooting immer wichtig.

Dennoch erfordert die Simulation von turbulenten Verbrennungsprozessen in technischen Feuerungssystemen nach wie vor enorme Rechenkapazitäten. Um den numerischen Aufwand und damit die notwendigen Hardware-Ressourcen und Rechenzeiten in industriell vertretbaren Grenzen zu halten, müssen bei der CFD-Simulation Modelle für Turbulenz, Verbrennung und Strahlung verwendet werden, also vereinfachende Annahmen, die den Rechenaufwand begrenzen. Allerdings schränken solche Modelle auch u. U. den Anwendungsbereich solcher Simulationen ein.

Basierend auf den Erkenntnissen des vorangegangenen AiF-Forschungsvorhabens „O2-Glaswanne“ (IGF-Nr.: 15987 N) wurden im Laufe dieses Projekts verschiedene Modellierungsansätze verfolgt, um eine belastbare, aber numerisch effiziente Simulation des Oxy-Fuel-Verbrennungsvorgangs zu erreichen.

Hierfür wurde ein reduzierter Reaktionsmechanismus entwickelt, parallel wurde der Flamelet-Ansatz für die Beschreibung stark nicht-adiabater Oxy-Fuel-Flammen erweitert. Anhand verschiedener Simulationen von gut vermessenen Validierungsfällen wurden die Modelle auf ihre Tauglichkeit hin geprüft. Insbesondere der nicht-adiabate Flamelet-Ansatz hat sich als sehr vielversprechend erwiesen

Des Weiteren wurde das Vibrations-CARS-Thermometrie-Verfahren für die Anwendung in der Oxy-Fuel-Verbrennung erweitert und erfolgreich demonstriert.

Das Ziel des Forschungsvorhabens wurde teilweise erreicht.

Obwohl große Fortschritte bei Verständnis und Modellierung der Oxy-Fuel-Verbrennung im industriellen Kontext erreicht wurden, konnten nicht alle geplanten Arbeitsziele realisiert werden. Die numerische Abbildung der Messungen am GWI-Versuchsofen konnte aufgrund aufgetretener technischer Schwierigkeiten nicht wie geplant durchgeführt werden. Die CARS-Thermometrie-Messungen andererseits demonstrieren, dass dieses Messverfahren in verfahrenstechnisch relevanten Geometrien und bei Oxy-Fuel-Verbrennung erfolgreich eingesetzt werden kann.

2. Wissenschaftlich-technische und wirtschaftliche Aufgabenstellung

2.1 Anlass für den Forschungsantrag / Ausgangssituation / Stand der Forschung

In vielen Bereichen der Hochtemperaturverfahrenstechnik findet die so genannte Oxy-Fuel-Verbrennungstechnik [1] immer weitere Verbreitung, etwa in der metallverarbeitenden Industrie [2], [3] oder in der Glasindustrie [4]. In der US-amerikanischen Glasindustrie z. B. sind bereits mehr als ein Viertel aller Glasschmelzwannen Oxy-Fuel-Anlagen [5].

In der Verfahrenstechnik wird unter der Oxy-Fuel-Verbrennung in der Regel die Verbrennung von flüssigen oder gasförmigen Brennstoffen (oft Erdgas) mit annähernd reinem Sauerstoff verstanden. Diese Definition steht somit im Gegensatz zu der im Kraftwerksbereich üblichen Bezeichnung, wo die Verbrennung von (oft festen) Brennstoffen in einer Sauerstoff-Kohlendioxid-Atmosphäre als Oxy-Fuel-Verbrennung bezeichnet wird [6], [7]. Dabei wird Abgas (bestehend aus CO_2 und H_2O) in erheblichem Umfang rezirkuliert, um die Temperaturen im Verbrennungsraum auf einem vergleichbaren Niveau zu halten wie bei konventionellen Kraftwerken. Ziel ist es, auf diese Weise möglichst hohe CO_2 -Konzentrationen im Abgas zu erreichen, welche sich dann erheblich leichter aus dem Abgas entfernen und anschließend speichern lassen (CCS-Technologie: Carbon Capture and Storage). Dies ist gerade aus ökologischen Gründen und vor dem Hintergrund des Handels mit CO_2 -Emissionszertifikaten erwünscht. Erste Pilotanlagen dieser Art sind bereits in den letzten Jahren in Betrieb genommen worden [8], [9]. Die Möglichkeiten der Oxy-Fuel-Technologie im Kraftwerksbereich konnten in diesen Anlagen erfolgreich demonstriert werden, allerdings sind noch Probleme beim Scale-Up zu erwarten [9].

Während somit im Kraftwerkssektor Oxy-Fuel-Verbrennung als Mittel gesehen wird, um die Abscheidung von CO_2 aus dem Abgas effizient gestalten zu können, betrachtet die thermische Verfahrenstechnik die Verbrennung mit reinem Sauerstoff eher als Möglichkeit, um hohe Verbrennungstemperaturen ohne intensive Luftvorwärmung zu erreichen.

Grundlage der Arbeiten in diesem Projekt ist die Oxy-Fuel-Verbrennung mit reinem Sauerstoff. Prinzipiell bietet diese Prozessführung in der Thermoprozesstechnik eine Reihe von Vorteilen. Der feuerungstechnische Wirkungsgrad eines Oxy-Fuel-Prozesses ist aus rein thermodynamischen Gründen höher als der einer luftgestützten Verbrennung (siehe **Bild 1**), weil der chemisch größtenteils inerte, in der Luft enthaltene Stickstoff, der in einer Verbrennung mit Luft nur als Wärmesenke fungiert, nicht erwärmt werden muss [1],[10], [11], [12], [13], [14]. Es fallen somit weitaus geringere Abgasverluste an.

In der Stahlindustrie wird der Einsatz der Oxy-Fuel-Technik gerade unter dem Gesichtspunkt der Durchsatzsteigerung, der energetischen Effizienz und dem sich abzeichnenden Handel mit CO_2 -Zertifikaten in der Industrie diskutiert. Als Beispiel sei hier die Substitution von elektrischer Energie durch die chemisch im Brenngas gebundene Energie in Kombination mit Sauerstoff bei Lichtbogenöfen genannt [2]. Andere Beispiele aus der Stahlbranche sind u. a.

in [13] zu finden. Generell können in vielen Prozessen aus der Metallindustrie Anfahr- und Aufheizzeiten durch den Einsatz von Sauerstoffbrennern reduziert werden, was mit entsprechenden Produktivitätssteigerungen verbunden ist.

Bei energetischen Betrachtungen darf der Energiebedarf für die Erzeugung des Sauerstoffs natürlich nicht außer Acht gelassen werden. Dennoch attestieren verschiedene Quellen Oxy-Fuel-befeuerten Anlagen einen besseren energetischen Gesamtwirkungsgrad [2], [15], [16]. Durch das steigende, weltweite Interesse an Oxy-Fuel-Verbrennung im Kraftwerkssektor vor dem Hintergrund der CCS-Debatte wird zudem verstärkt an effizienteren Möglichkeiten zur Erzeugung reinen Sauerstoffs geforscht, so dass hier in den nächsten Jahren deutliche technologische Fortschritte zu erwarten sind [7], [17].

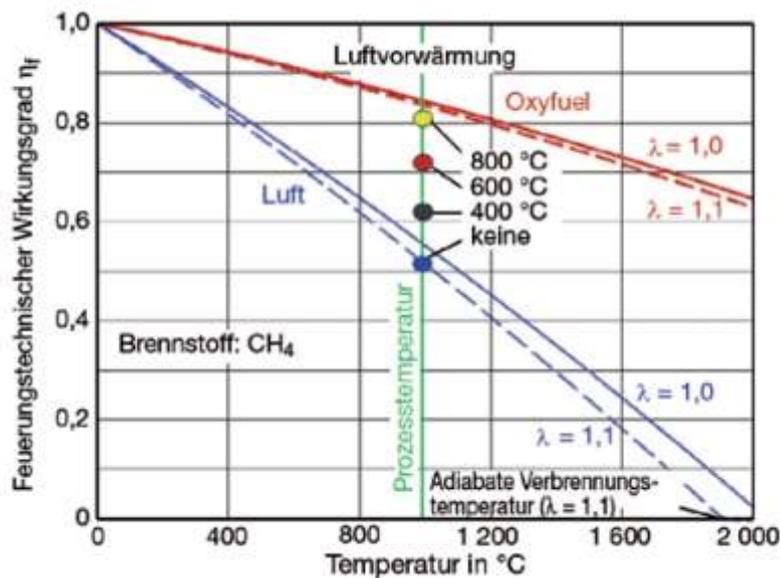


Bild 1: Feuerungstechnischer Wirkungsgrad für die Verbrennung von Methan – Vergleich der Verbrennung mit Luft und Sauerstoff [1]

Die effizientere energetische Umsetzung der im Brennstoff gebundenen Energie durch die Verbrennung mit reinem Sauerstoff macht sich vor allem anhand der deutlich höheren adiabaten Flammentemperaturen bemerkbar. Bei einer stöchiometrischen Methan-Luft-Verbrennung (ohne Verbrennungsluftvorwärmung) liegt die adiabate Flammentemperatur bei etwa 2.000 °C, bei einer entsprechenden Verbrennung mit reinem Sauerstoff jedoch bei ca. 2.800 °C [18], [19].

Derart hohe Temperaturen können mit dem Oxidator Luft nur durch aufwändige Luftvorwärmung erreicht werden. Allerdings sind solche Verbrennungsvorgänge mit hohen Temperaturen immer mit erheblicher Stickoxidbildung verbunden. Diese Stickoxide müssen dann in der Regel durch Primärmaßnahmen oder in nachgeschalteten, kostenintensiven Entstickungsanlagen reduziert werden, um die gesetzlichen Vorgaben einzuhalten.

Bei einer Oxy-Fuel-Feuerung hingegen fällt die Luft als Hauptstickstoffquelle von vornherein weg, so dass prinzipiell ein erhebliches NO_x -Minderungspotenzial vorliegt. Als Stickstoffquellen verbleiben noch das Brenngas (meist Erdgas, in dem eine gewisse Menge N_2 enthalten sein kann), Verunreinigungen im Sauerstoff (O_2 für Industrieprozesse kann zwischen 0,1 und

5 Vol.-% N₂ enthalten [20]), Falschluff sowie Stickstoff, der z. B. prozessbedingt aus Wärmegütern (z. B. Nitratläuterung im Glasschmelzprozess) freigesetzt wird. Aufgrund der hohen lokalen Temperaturen und Reaktionsgeschwindigkeiten in einem Oxy-Fuel-System wird vorhandener Stickstoff sehr schnell zu NO_x aufoxidiert, so dass insbesondere der Brennerauslegung und Prozessführung große Bedeutung zukommt, um die Stickoxidbildung zu reduzieren [21]. Prinzipiell sind jedoch erhebliche Minderungspotenziale realisierbar [22]. Gerade für die Glasindustrie stellt dies neben der energetischen Effizienz ein wesentliches Argument für den Einsatz von Oxy-Fuel-Brennern dar.

Ein weiterer Vorteil der Oxy-Fuel-Technologie ist die sehr flexible Regelbarkeit von Oxy-Fuel-Anlagen, da sie weitaus weniger träge auf Änderungen der Betriebsparameter reagieren als konventionelle luft-befeuerte Anlagen. Dadurch erfordern Oxy-Fuel-Systeme aber auch Regelsysteme mit kurzen Ansprechzeiten und Regelungskonzepte, die auf mehrere Regelgrößen reagieren können, um den gesamten Prozess optimal zu steuern. Die leichtere Regelbarkeit von Oxy-Fuel-Feuerungen hat auch dazu geführt, dass gerade im Bereich sensibler Fertigungsprozesse, etwa bei der Produktion hochwertiger Spezialgläser, vermehrt Oxy-Fuel-Systeme verwendet werden [23], [24].

Die genannten Vorteile haben dazu geführt, dass Oxy-Fuel-Feuerungen, trotz zusätzlicher Betriebskosten für die Bereitstellung des Sauerstoffs, besonders im Bereich der Metall- und Glasindustrie, immer mehr an Bedeutung zunehmen. [2], [25], [26]. Grundlegende wissenschaftliche Untersuchungen wurden Ende der 90er Jahre durch die International Flame Research Foundation (IFRF) im Rahmen des OXYFLAM-Projekts durchgeführt [27], [28].

Bei der Auslegung und Optimierung verfahrenstechnischer Anlagen und Prozesse haben sich numerische Simulationen (CFD) in den letzten Jahren als ein wichtiges Design-Werkzeug etabliert. Durch den Einsatz rechnergestützter Entwicklungs- und Optimierungsverfahren konnten verfahrenstechnische Anlagen stetig verbessert werden.

Trotz ständig steigender verfügbarer Rechnerkapazitäten stellen Simulationen industrieller Anlagen jedoch nach wie vor immer einen Kompromiss zwischen numerischem Aufwand und Detailgrad der Prozessbeschreibung dar, eine Situation, die sich auch in absehbarer Zukunft nicht ändern wird. Insbesondere im Bereich der Modellierung des Verbrennungsvorgangs in turbulenten Strömungen muss mit erheblichen Vereinfachungen gearbeitet werden, um Rechenzeiten und Hardware-Bedarf für industrielle Aufgabenstellungen vertretbar zu halten. Solche Modelle schränken aber zwangsläufig den Gültigkeitsbereich der Simulationen ein, weshalb die verwendeten Modelle mit großer Sorgfalt für die gegebene Aufgabenstellung ausgewählt und angepasst werden müssen.

Grundsätzlich haben sich bei der numerischen Modellierung von turbulenten reaktiven Strömungen in industriellen Anwendungen zwei Modellfamilien zur Beschreibung von Verbrennungsvorgängen etabliert: Wirbelzerfallsmodelle und tabellenbasierte Verfahren. Bei den Wirbelzerfallsmodellen werden im CFD-Code zusätzliche Transportgleichungen für eine kleine Anzahl chemischer Spezies (meistens sechs bis sieben Spezies) gelöst, wobei die eigentlichen Verbrennungsvorgänge mit Hilfe eines sogenannten "reduzierten" Reaktionsme-

chanismus beschrieben werden, um die Rechenzeit für industrielle Anwendungen auf ein vertretbares Maß zu senken.

Im Gegensatz zu einem verhältnismäßig „detaillierten“ Reaktionsmechanismus, wie z. B. dem GRI 3.0 [29] des Gas Research Institute, beschreibt ein „reduzierter“ Mechanismus die Verbrennungschemie in Abhängigkeit von nur wenigen (typischerweise weniger als zehn) chemischen Komponenten. In der Vergangenheit häufig praktizierte Methoden zur Gewinnung reduzierter Mechanismen waren auf physikalisch-chemischem Verständnis beruhende „ad hoc“-Methoden, mit denen einige wenige Reaktionsschritte postuliert wurden, mit anschließender Anpassung von Modellkonstanten. Für die Brennstoff-Luft-Verbrennung seien hier der Westbrook-Dryer-Mechanismus [30] oder der Jones-Lindstedt-Mechanismus [31] genannt.

Ein wesentliches Problem bei der Verwendung solcher „ad hoc“-Methoden ist, dass damit gewonnene Beschreibungen der Verbrennungschemie nur für bestimmte Anwendungsfälle einsetzbar sind. Sobald diese Mechanismen außerhalb ihrer Gültigkeitsgrenzen angewendet werden, kann die Zuverlässigkeit von CFD-Simulationen, speziell in Hinblick auf die Berechnung von Wärmefreisetzung, Spezies- und insbesondere Schadstoffkonzentrationen (NO_x , SO_x , Ruß, etc.), entweder gar nicht oder nicht mit zufriedenstellender Genauigkeit - und damit Zuverlässigkeit - gewährleistet werden.

Ein weiteres konzeptionelles Problem ist, dass die Qualität solcher „ad-hoc“-Reaktionsmechanismen in hohem Maße fallabhängig ist. Durch die in den letzten 20 Jahren entwickelten, sogenannten systematischen Methoden der Extraktion wesentlicher Reaktionen aus umfangreichen Reaktionsmechanismen, etwa ILDM-Verfahren [32], [33] oder genetische Algorithmen [34], [35], können jedoch aussagekräftige und verlässliche Reaktionsmechanismen auf mathematisch konsistente Weise erzeugt werden.

Die Verwendung von stark reduzierten Reaktionsmechanismen für die CFD-Modellierung von Verbrennungsvorgängen in turbulenten Strömungen hat sich in vielen industriellen Anwendungen bewährt, stößt jedoch vor allem bei unkonventionellen Verbrennungsvorgängen, wie etwa der Oxy-Fuel-Verbrennung, an ihre Grenzen [36], [37].

Die Alternative zur Beschreibung von Verbrennungsvorgängen mit Hilfe von Wirbelzerfallsmodellen und stark reduzierten Reaktionsmechanismen in CFD-Anwendungen stellen tabellebasierte Verfahren dar. Hier wird vor der eigentlichen CFD-Simulation eine umfangreiche Chemiedatenbank (z. B. Temperatur, temperaturabhängige Stoffeigenschaften, wie Dichte, Wärmekapazität etc.) mit Hilfe umfangreicher Reaktionsmechanismen und mehr oder weniger detaillierter chemischer Modelle (z. B. chemisches Gleichgewicht oder Flamelets) angelegt, auf die während der eigentlichen Strömungssimulation zugegriffen wird. Während der eigentlichen Strömungssimulation werden dann nur Transportgleichungen für eine deutlich geringere Anzahl charakteristischer Parameter gelöst (z. B. Mischungsbruch und Mischungsbruchvarianz, Enthalpie Fortschrittsvariable, ...), mit denen für jede Zelle des numerischen Rechengebiets der lokale chemische Zustand eindeutig festgelegt werden kann. Die Erstel-

lung der Chemiedatenbanken kann z. B. durch Gleichgewichts- oder Flamelet-Modelle erfolgen.

Grundlage des Gleichgewichtsmodells ist die Annahme, dass chemische Verbrennungsvorgänge meist erheblich schneller ablaufen als turbulente Mischungsprozesse. Daher kann bei nicht-vorgemischten Flammen oft davon ausgegangen werden, dass die Verbrennung unmittelbar und instantan stattfindet, sobald sich ein Mischungszustand eingestellt hat. Beim Gleichgewichtsmodell wird dieser chemische Zustand mit Hilfe des chemischen Gleichgewichts bestimmt.

Das Flamelet-Konzept [38], [39], [40] hingegen beschreibt eine turbulente Flamme als Menge ein-dimensionaler Flämmchen, für die generische Lösungen anhand detaillierter Reaktionsmechanismen mit geringem Aufwand berechnet und anschließend tabelliert werden können.

Um den Einfluss der Turbulenz zu modellieren, kann eine Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung (Probability Density Function, PDF) der charakteristischen Parameter (z. B. Mischungsbruch, Enthalpie, ...) angenommen werden, was durch Wichtung mit einer PDF Formfunktion („assumed shape“) [41], [42] geschehen kann. Diese PDF wird durch Mittelwerte und Varianzen der charakteristischen Parameter festgelegt, deren Transportgleichungen im CFD-Code unter Berücksichtigung von turbulenter Mischung und Strahlung gelöst werden. Da die Wichtung mit der PDF erheblichen Rechenaufwand erfordert, wird sie in der Regel vorab durchgeführt. Die Ergebnisse werden in der endgültigen Tabelle gespeichert, welche dem CFD-Code zur Verfügung steht.

Sowohl Wirbelzerfallsmodelle in Kombination mit reduzierten Mechanismen als auch tabellenbasierte Verfahren zur Darstellung der Verbrennungskemie sind bei der Beschreibung thermoprozesstechnischer Anlagen etabliert und haben sich in vielen Anwendungen bewährt. Während für die konventionelle Erdgas-Luft-Verbrennung somit eine ganze Reihe etablierter und gut validierter Reaktionsmodelle zur Verfügung stehen, muss jedoch bei der Simulation unkonventioneller Verbrennungsvorgänge im Einzelfall geprüft werden, ob die ausgewählten Modelle für den zu modellierenden Prozess geeignet sind [36], [37].

Ein wichtiger Punkt bei der Entwicklung von Reaktionsmodellen ist die Validierung der Modelle mit Hilfe detaillierter experimenteller Untersuchungen. Die Oxy-Fuel-Feuerung stellt aufgrund der hohen lokalen Temperaturen hierbei eine besondere Herausforderung für die einzusetzende Messtechnik dar. Gleichzeitig sind verlässliche, räumlich aufgelöste Temperaturmessungen wesentlich für die Validierung der Modelle, da die reaktionskinetischen Prozesse in hohem Maße von der Temperatur beeinflusst werden.

In dem 2011 beendeten AiF-Forschungsprojekt O2-Glaswanne (AiF-Nr. 15 897 N) [43] wurde die Bedeutung der Validierung von numerischen Modellen deutlich. Im Rahmen des Projekts sollten mit Hilfe der numerischen Strömungssimulation neuartige, speziell auf die Eigenheiten der Oxy-Fuel-Verbrennung zugeschnittene Schmelzwannenkonzepte in der Glasindustrie entwickelt werden. Vergleiche zwischen Simulationen und an einem semi-industriellen Brennerprüfstand durchgeführten detaillierten Messungen zeigten jedoch erhebliche Dis-

Abweichungen zwischen den gemessenen Daten und den Simulationsergebnissen (siehe z. B. auch **Bild 2**), so dass die Simulationen mit Hilfe von für industrielle Aufgabenstellungen üblichen Verbrennungsmodellen (etwa nicht-adiabates PDF-Gleichgewichtsmodell oder auch EDM mit stark reduzierten Reaktionsmechanismen) zur Bewertung und Optimierung verschiedener Ofenkonzepte nicht geeignet waren.

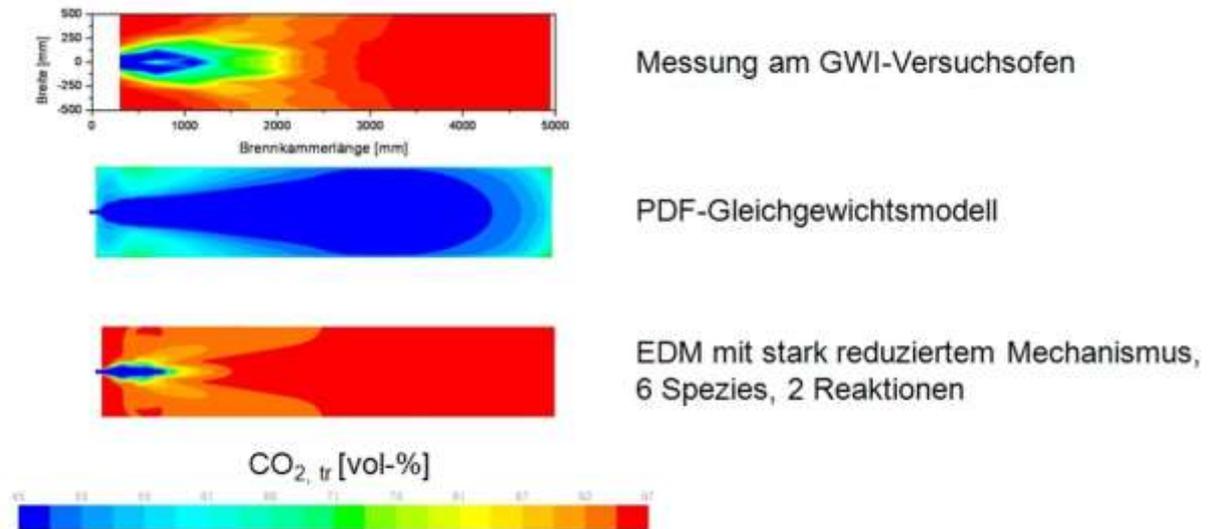


Bild 2: Vergleich von gemessenen und mit verschiedenen Verbrennungsmodellen simulierten CO_2 -Verteilungen bei einem Oxy-Fuel-Brenner [43]

Lediglich ein numerisch sehr aufwendiges Verbrennungsmodell, basierend auf dem Eddy-Dissipation-Concept [44] in Kombination mit einem verhältnismäßig umfangreichen Reaktionsmechanismus mit 17 Spezies und 50 Elementarreaktionen [45] war in der Lage, Form und Größe der Flamme zufriedenstellend wiederzugeben (siehe **Bild 3**), allerdings mit einem derart hohen numerischen Aufwand, dass die Anwendung dieser Modelle für industriell relevante Aufgabenstellungen nicht sinnvoll erscheint.

Während das Versagen des tabellen-basierten PDF-Gleichgewichtsmodells vermutlich auf ein Problem bei der Implementierung im verwendeten CFD-Code FLUENT (Version 6.3) zurückzuführen ist, lässt sich die mangelnde Eignung der reduzierten 2- und 4-Schritt-Reaktionsmechanismen von Westbrook-Dryer [30] und Jones Lindstedt [31] anhand von reaktionskinetischen Elementenflussanalysen (in **Bild 4** sind die Kohlenstoffflüsse für die stöchiometrische CH_4 -Luft-Verbrennung und die stöchiometrische CH_4 - O_2 -Verbrennung dargestellt) aufzeigen. Reduzierte Reaktionsmechanismen versuchen, technisch relevante Verbrennungsprozesse mit einer möglichst geringen Anzahl von Spezies und Reaktionen abzubilden, um auf diese Weise den rechnerischen Aufwand für die Beschreibung von Verbrennungsvorgängen in einer turbulenten Strömung soweit wie möglich zu minimieren. Dies führt jedoch zu einer Begrenzung der Anwendbarkeit dieser reduzierten Mechanismen. Die chemischen Vorgänge bei einer Oxy-Fuel-Verbrennung sind aufgrund der weitaus höheren lokalen Temperaturen und der höheren Konzentrationen der Reaktionspartner und Radikale

(der alles verdünnende Stickstoff fehlt) völlig anders als bei der „klassischen“ Verbrennung von Methan mit Luft.

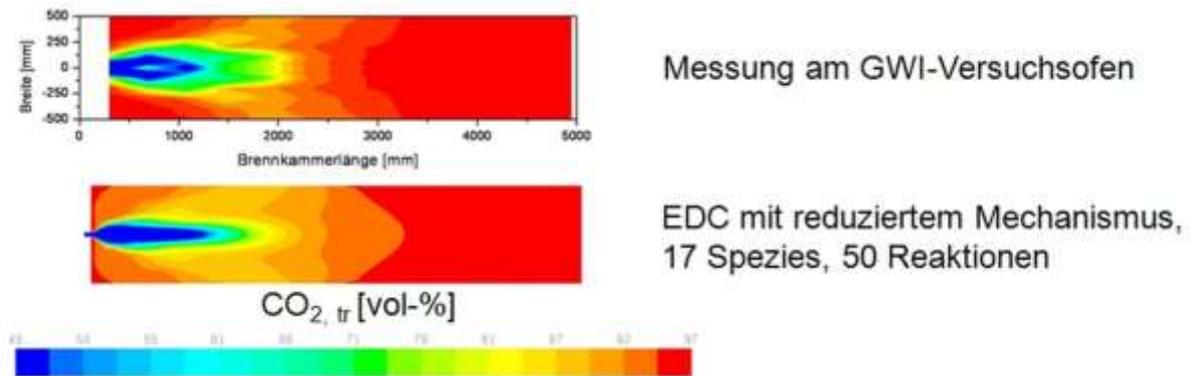
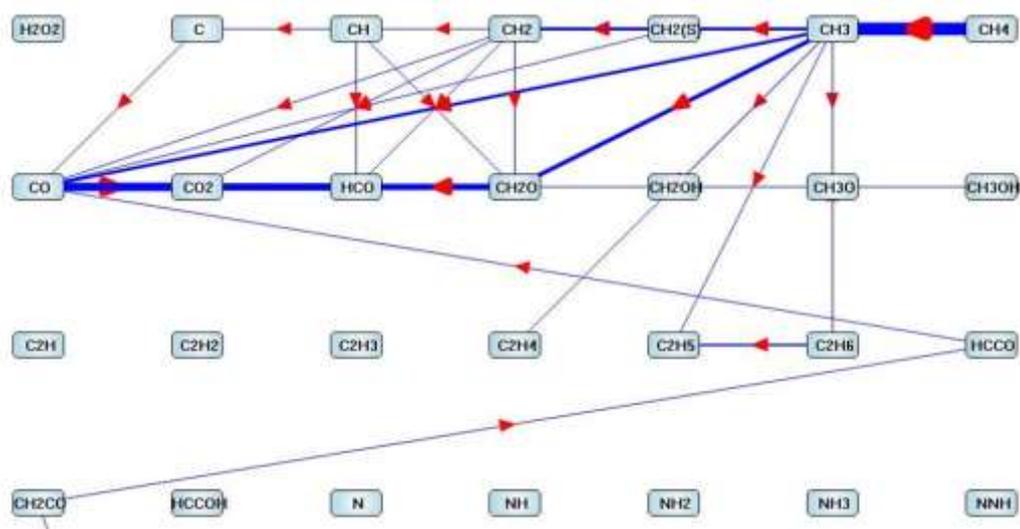
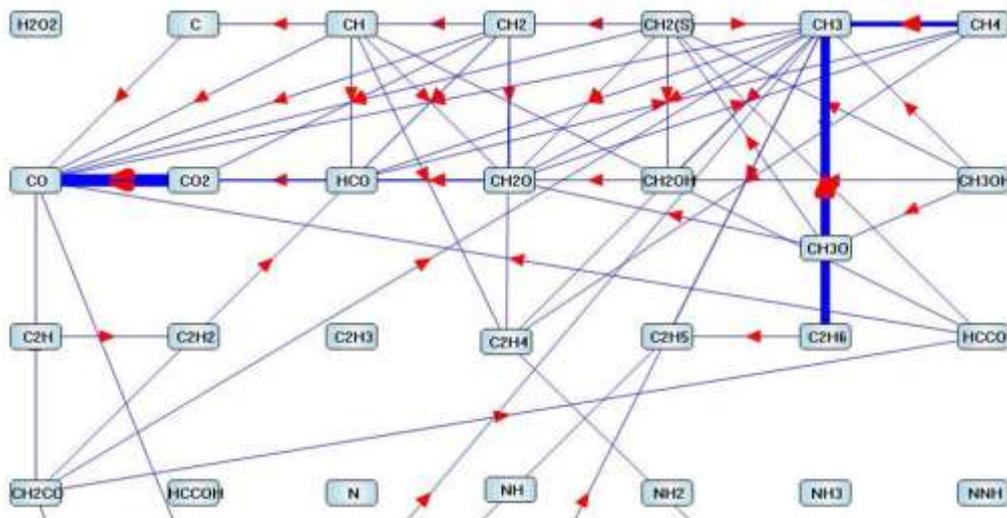


Bild 3: Vergleich der gemessenen und berechneten CO₂-Verteilung für einen Oxy-Fuel-Brenner, basierend auf einem EDC-Modell und einem verhältnismäßig umfangreichen Reaktionsmechanismus

Diese Erkenntnis wurde auch von anderer Seite bestätigt, z. B. [37], [46]. Zwar existieren Reaktionsmodelle, die die Vorgänge bei einer Oxy-Fuel-Verbrennung physikalisch sinnvoll abbilden können, jedoch werden diese Modelle aufgrund ihres erheblich höheren numerischen Aufwands bisher ausschließlich für akademische Aufgabenstellungen verwendet. Der ungleich höhere Bedarf an Rechenzeit und Speicherkapazität sowie das schwierigere „Handling“ dieser Modelle hat dazu geführt, dass sie sich bisher nicht bei der Beschreibung industrieller Anwendungen durchgesetzt haben.



a)



b)

Bild 4: Vergleich der Elementenflussanalyse des Kohlenstoffs für die Verbrennung mit Luft (a) und reinem Sauerstoff (b)
[43]

Neben den Herausforderungen, die die Oxy-Fuel-Verbrennung an die Modellierung von turbulenten Verbrennungsvorgängen stellt, gestaltet sich auch die messtechnische Untersuchung als schwierig, wobei dies insbesondere für die Messungen von Temperaturen im Brennernahbereich gilt.

Eine prinzipielle und in der Verfahrenstechnik weitverbreitete Möglichkeit zur Temperaturmessung sind invasive Messtechniken auf Basis von mechanischen Sonden, die in direktem Kontakt mit dem Messobjekt stehen, etwa Thermoelemente. Dadurch tritt allerdings insbesondere in chemisch reagierenden Strömungen eine unerwünschte Wechselwirkung zwischen Sonde und Strömung auf. So findet z. B. eine Beeinflussung des Strömungsvorgangs oder statt. Eine derartige Wechselwirkung kann zu erheblichen Messunsicherheiten führen oder die Messung gar unmöglich machen (siehe z. B. [47]). Diese Problematik dominiert besonders bei der Temperaturbestimmung in technisch relevanten Verbrennungsprozessen. Ein weiteres Problem sind lokal hohe Temperaturen, wie sie bei der Oxy-Fuel-Verbrennung auftreten und die Thermoelemente beschädigen oder zerstören können.

Die Nutzung alternativer quantitativer, nicht-invasiver Messtechniken ist somit in diesen Fällen häufig sinnvoll. Zur Erzielung der oft notwendigen hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung sind laser-basierte Messverfahren für diese Aufgabe besonders gut geeignet. Ein eindrucksvolles Beispiel der Vorteile nicht-invasiver Methoden ist in **Bild 5** dargestellt. Darin wird die Nutzung einer mechanischen Sonde im Vergleich zu einer laser-basierten Messsonde demonstriert. Auf der linken Seite der Abbildung ist bei der mechanischen Sonde eine erhebliche Wechselwirkung mit der zu untersuchenden Flamme zu sehen. Die laserbasierte Messsonde auf der rechten Seite zeigt hingegen offensichtlich keine Wechselwirkung mit dem Verbrennungsprozess und lässt eine störungsfreie Untersuchung zu.

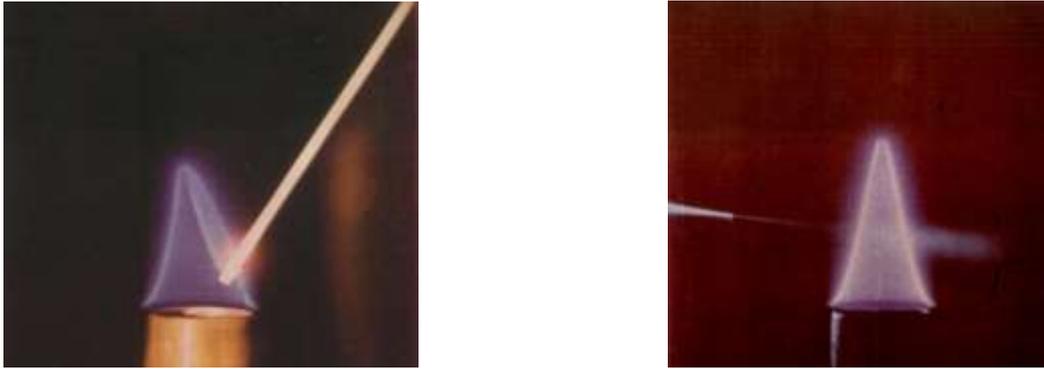


Bild 5: Vergleich des Einflusses von mechanischen (links) und laseroptischen Sonden (rechts) in einem Verbrennungsvorgang [48]

Zur quantitativen zeit- und orts aufgelösten Bestimmung von thermodynamischen Zustandsgrößen in der Gasphase, auch in instationären Systemen, eignen sich prinzipiell eine ganze Reihe von laser-basierten optischen Messverfahren, wie z. B. Rayleigh-, Fluoreszenz-, lineare Raman- und CARS-Techniken (siehe z. B. [49]). Unter diesen laser-optischen Messtechniken ist die kohärente Anti-Stokes-Raman-Streuung (CARS) hinsichtlich einer Nutzung zur Temperaturmessung in technisch relevanten Prozessen sehr weit entwickelt und speziell für präzise Hochtemperaturmessungen auch bei eingeschränkter optischer Zugänglichkeit besonders gut geeignet [50]. Bei den Temperaturmessungen am Hochtemperaturprüfstand des GWI sollte daher auf das Messverfahren der kohärenten Anti-Stokes Raman Spektroskopie (CARS) zurückgegriffen werden.

Bei der CARS-Spektroskopie wird zur Temperaturbestimmung die Verteilung der Gasmoleküle im Messvolumen bezüglich ihrer Vibrations- bzw. Rotationszustände bestimmt. Im thermodynamischen Gleichgewicht ist diese durch die Boltzmann-Verteilung gegeben:

$$\frac{N_a}{N_b} = \exp\left[\frac{-(E_a - E_b)}{k_B T}\right]$$

Das Verhältnis der Besetzungszahlen N_i zweier molekularer Zustände i ist definiert durch die Energien der Zustände E_i , die Boltzmannkonstante k_B sowie die Absoluttemperatur T . Dieser Zusammenhang wird zur Temperaturbestimmung genutzt.

In der technischen Umsetzung erzeugen drei im Medium sich zeitlich und räumlich überlagernde Laserstrahlen der Frequenzen ω_1 , ω_2 und ω_3 im Schnittpunkt eine vierte Welle der Frequenz $\omega_{\text{CARS}} = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$. Eine resonante Verstärkung der abgestrahlten Welle findet dann statt, wenn die Wellenlängen zweier Laser resonant auf die jeweilige Spezies abgestimmt sind und die Differenzfrequenz $\omega_1 - \omega_2$ somit gerade einem erlaubten Raman-Übergang entspricht. Vereinfacht lässt sich dieser Prozess in einem Energieniveauschema darstellen, das in **Bild 6a** zu sehen ist. Die Eigenschaften des ausgesandten CARS-Signals sind ähnlich denen eines Lasers. Das ist ein besonderer Vorteil, denn sowohl auf der Einstrahl- als auch auf der Detektionsseite sind optische Fenster mit einem Durchmesser von nur wenigen Zentimetern notwendig. Das abgestrahlte CARS-Signal ist dann ohne Signalverlust über ein Detektionssystem

tem, bestehend aus einem Spektrometer und einer CCD-Kamera, gut detektierbar. In **Bild 6b** ist ein typischer CARS-Aufbau schematisch dargestellt.

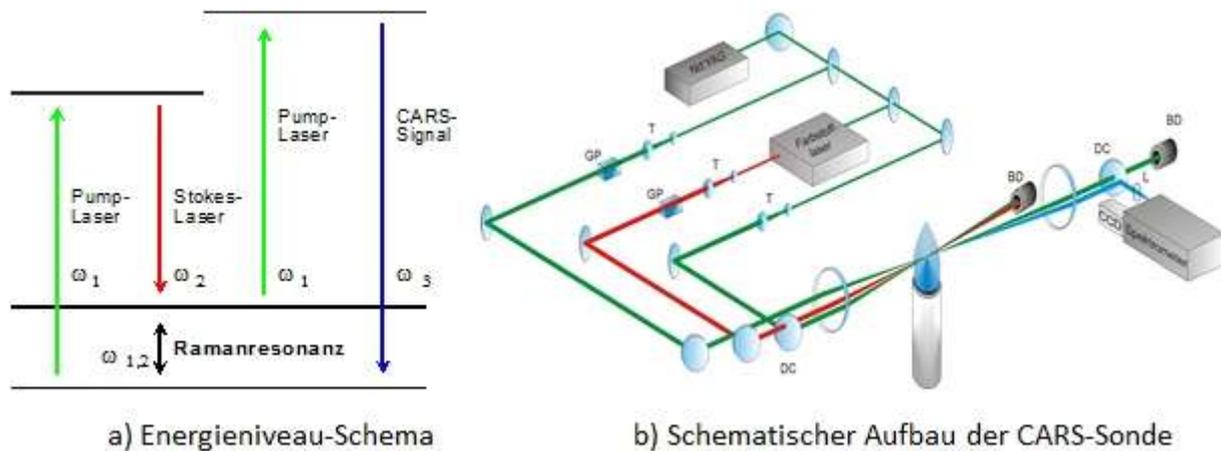


Bild 6: Energieniveauschema (links) und schematischer Aufbau (rechts) der CARS-Sonde

Das CARS-Verfahren ist ein bereits für viele Verbrennungsvorgänge erprobtes laserbasiertes Temperaturmessverfahren. Neben der Nutzung an reinen Laborflammen wurde die CARS-Technik bereits vielfach zur punktuellen Temperaturmessung in technisch relevanten Flammen, wie z. B. in motorischen Prozessen [51], [52], in Kohlenstaubverbrennungen [53], in Strahlungsbrennern [54] oder Gasturbinenbrennern [55] genutzt und wurde darüber hinaus als Referenzsystem für andere optische Temperaturmesssysteme verwandt (siehe z. B. [56]). Es ist besonders geeignet, unter optisch schwierigen Bedingungen präzise Temperaturmesswerte zu erzielen. Aufgrund der speziellen nichtlinearen Wechselwirkung der einstrahlenden gepulsten Laser mit den im Verbrennungsvorgang vorhandenen Gasmolekülen können Störeinflüsse, z. B. durch das Eigenleuchten der Flamme, durch Fluoreszenzen und durch Partikel oder Rußteilchen, vermieden werden. Das CARS-Verfahren in Form der Vibrations-CARS Technik ist besonders gut für präzise Messungen im Hochtemperaturbereich geeignet. So wurden bereits Vibrations-CARS Messungen am Stickstoff bis zu einer Temperatur von 2950 °C erfolgreich durchgeführt.

In den meisten CARS-Anwendungen wurde bisher das Stickstoff-Molekül als Informationsquelle verwendet. Für die Untersuchung der Oxy-Fuel-Verbrennung ist dies aus naheliegenden Gründen ungeeignet, weswegen alternative Moleküle auf ihre Eignung hin untersucht werden müssen. Mögliche Kandidaten sind hier insbesondere die O_2 - und CO - Moleküle. Die Nutzung des CO -Moleküls zur Temperaturbestimmung ist neu, jedoch sind die notwendigen Moleküldaten bekannt, und mittels der Vibrations-CARS-Technik wurden auch bereits Konzentrationsmessungen dieser Spezies in Verbrennungsvorgängen durchgeführt [57]. In **Bild 7** ist ein kaltes CO CARS-Signal bei Umgebungstemperatur einem heißen CO -Signal aus einer vorgemischten Flamme gegenüber gestellt. Daraus ist erkennbar, dass ein erfolgreicher Einsatz der Vibrations-CARS-Technik mit dem Ziel, möglichst präzise Validierungsdaten zu erhalten, gewährleistet sein sollte.

Eine weitere Herausforderung in diesem Kontext, neben der Wahl eines geeigneten Mole-

küls als Signalgeber, dürfte auch die Anlagengröße sein. Während CARS-Systeme bisher meist in Anlagen mit recht kleinen Abmessungen (Motoren, Gasturbinenbrennkammern, etc.) zum Einsatz kamen, sind Industrieofenanlagen meist erheblich größer.

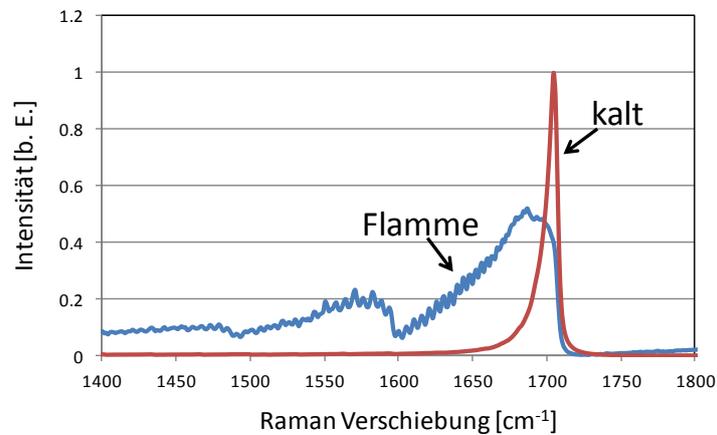


Bild 7: „Kaltes“ CO CARS-Signal bei Umgebungstemperatur gegenüber einem „heißen“ CO-Signal aus einer vorgemischten Flamme

In Anbetracht der technischen Herausforderungen der Oxy-Fuel-Verbrennung sowohl für die Simulations- als auch für die Messtechnik erscheint es nun sinnvoll und notwendig, zum einen speziell für diese Anwendungen zugeschnittene Verbrennungsmodelle für CFD-Simulationen zu entwickeln und zum anderen durch geeignete messtechnische Verfahren Daten zur Validierung solcher Modelle bereitzustellen, um die Vorteile der simulationsgestützten Analyse und Optimierung von Verbrennungsprozessen auch bei der Oxy-Fuel-Verbrennung nutzen zu können.

3. Forschungsziel / Forschungsergebnisse / Lösungsweg

3.1. Forschungsziel

Ziel des Forschungsvorhabens ist die Entwicklung und Validierung von industriell einsetzbaren Reaktionsmodellen zur numerischen Beschreibung von Oxy-Fuel-Feuerungsprozessen in thermoprozesstechnischen Anlagen. Zwar sind schon durchaus numerische Modelle verfügbar, mit denen die chemischen Prozesse in einer Oxy-Fuel-Verbrennung mit zufriedenstellender Genauigkeit abgebildet werden können, allerdings schließen der mit diesen Modellen verbundene hohe rechentechnische Aufwand sowie ihre mitunter problematische Handhabung die Verwendung dieser Modelle für industrielle Fragestellungen (z. B. Optimierung von Brenner- oder Ofenraumgeometrien, Parameterstudien, etc.) bisher in der Regel aus.

Im Rahmen des Forschungsvorhabens sollen daher Reaktionsmodelle für CFD-Software-Pakete entwickelt werden, die einen gangbaren Kompromiss zwischen einer belastbaren Modellierung der relevanten Prozesse in einer Oxy-Fuel-Flamme und dem numerischen Aufwand hinsichtlich Rechenzeit und Speicherbedarf darstellen, analog zur Entwicklung leicht handhabbarer und verlässlicher Modelle für die Brennstoff-Luft-Verbrennung in CFD-Codes in den 80er-Jahren.

Dabei sollen zwei unterschiedliche Modellierungsstrategien, Wirbelzerfallsmodelle in Kombination mit stark reduzierten Reaktionsmechanismen auf der einen Seite und tabellenbasierte Verfahren auf „flamelet“-Basis auf der anderen Seite, verfolgt und miteinander verglichen werden, um die Vor- und Nachteile der verschiedenen Ansätze herausarbeiten und bewerten zu können.

Durch die Einbindung detaillierter experimenteller Untersuchungen in der Reaktionszone (speziell die Aufnahme von Temperaturen, $T > 2000 \text{ °C}$) von Oxy-Fuel-Flammen an einem semi-industriellen Versuchsstand wird dabei sichergestellt, dass die entwickelten Reaktionsmodelle die Realität des Oxy-Fuel-Prozesses trotz aller notwendigen Vereinfachungen mit hinreichender Genauigkeit wiedergeben und bei Simulationen industrieller Anwendungen verlässliche Voraussagen bezüglich Geschwindigkeits-, Temperatur-, Wärmefreisetzungs- und Speziesverteilungen ermöglichen; Informationen also, die für die Auslegung und Optimierung verfahrenstechnischer Anlagen benötigt werden. Gerade eine möglichst realitätsnahe Wiedergabe der Speziesverteilungen ist von großer Bedeutung, da diese unmittelbar in das Strahlungsmodell und somit auf die Beschreibung des Wärmetransports eingehen. Dies ist ein wichtiger Aspekt, der insbesondere für Industrieöfen von herausragender Bedeutung ist. In Hochtemperaturöfen stellt Strahlung den dominierenden Wärmetransportmechanismus dar, was eine verlässliche Beschreibung des Verbrennungsprozesses in einer CFD-Simulation unerlässlich macht. Fehlt allerdings eine solche Beschreibung, ist die komplette Simulation mit erheblichen Unsicherheiten behaftet.

3.2. Forschungsergebnisse

3.2.1 Angestrebte Forschungsergebnisse

Als Ergebnis dieses Forschungsprojekts sollen dem industriellen CFD-Anwender in der thermischen Verfahrenstechnik effiziente, verlässliche und gut validierte Reaktionsmodelle für die Beschreibung von Oxy-Fuel-Feuerungen mit Hilfe gängiger CFD-Software-Pakete zur Verfügung gestellt werden.

Die Entwicklung und Validierung von Reaktionsmodellen für CFD-Codes ist eine komplexe Aufgabe, die die intensive Zusammenarbeit von Spezialisten in den Gebieten der Reaktionskinetik und Verbrennungsmodellierung, der numerischen Strömungssimulation und der experimentellen Untersuchung von Hochtemperatursystemen erfordert.

Dies ist ein Aufwand, den gerade kleine und mittlere Unternehmen (KMU) nicht allein erbringen können, weder im Hinblick auf den damit verbundenen finanziellen Aufwand noch auf das hierfür benötigte, hochgradig spezialisierte Personal. Anbieter von CFD-Software-Paketen auf der anderen Seite betrachten die Oxy-Fuel-Technologie in der thermischen Verfahrenstechnik nach wie vor als Nischenanwendung und sind daher nicht willens, von sich aus entsprechende Entwicklungsarbeiten durchzuführen. Sie verweisen auf die Arbeit an Universitäten und Forschungsinstituten bzw. auf die mögliche Verwendung umfangreicherer Reaktionsmodelle mit höherem numerischen Aufwand und Hardware-Bedarf, was für Simulationen in der Industrie, insbesondere bei kleinen und mittelständischen Unternehmen, aufgrund des damit verbundenen hohen finanziellen und zeitlichen Aufwands meist kein gangbarer Weg ist.

Durch die Einbindung von Universitäten und industrienahen Forschungsinstituten sollte innerhalb des vorgeschlagenen Forschungsvorhabens sichergestellt werden, dass die zu entwickelnden Reaktionsmodelle sowohl vom theoretischen Standpunkt her fundiert als auch für die industrielle Anwendung geeignet sind. Mit Hilfe detaillierter messtechnischer Untersuchungen war die Validierung der Modelle für industrienahen Bedingungen sicherzustellen.

Ziel war somit, den CFD-Anwendern, gerade auch im Bereich von KMU, validierte Reaktionsmodelle zur Untersuchung, Auslegung und Optimierung von Oxy-Fuel-Anlagen zur Verfügung zu stellen.

3.2.2 Innovativer Beitrag der angestrebten Forschungsergebnisse

Heutzutage werden kaum noch Um- und Neubauten von Anlagen oder die Auslegung und Optimierung von Komponenten ohne vorherige numerische Überprüfung durchgeführt. Industrieunternehmen, gerade auch KMU, die bei Investitionsentscheidungen unter Zeitdruck stehen, können es sich aber nicht leisten, monatelang auf Simulationsergebnisse zu warten. Hier fehlt der Industrie ein verlässliches und zeiteffizientes Verbrennungsmodell zur Vorhersage der Wärmeübertragungseigenschaften, Konzentrations- und Temperaturverteilungen von Oxy-Fuel-Flammen. Gerade diese Größen sind zur Auslegung von Anlagen und Komponenten hinsichtlich Energieverbrauch und Schadstoffverhalten unerlässlich.

Eine umfangreiche Literaturrecherche sowie Erkenntnisse aus dem erwähnten AiF-Forschungsvorhaben zur Nutzung der Oxy-Fuel-Technologie in Glasschmelzwannen („O₂-Glaswanne“, [43]) zeigen jedoch, dass es bisher keine zufriedenstellende Lösung für die effiziente und verlässliche Simulation von Oxy-Fuel--Verbrennungsvorgängen mit Hilfe von CFD-Verfahren gibt.

Deshalb liefern die angestrebten Forschungsergebnisse gerade für KMU folgenden innovativen Beitrag:

- a) Aus ökonomischer Sicht können durch die Verwendung genauer und zeiteffizienter Verbrennungsmodelle die Anlagen und Komponenten detaillierter ausgelegt und optimale Konfigurationen, die eine deutliche Energieeinsparung versprechen, entwickelt werden. Dies spart in letzter Konsequenz Investitions- und Entwicklungskosten. Produktionsausfälle, die z. B. durch langes „Herumexperimentieren“ oder Falschauslegung auftreten, können so minimiert werden.
- b) Aus energetischer Sicht kann durch die Verwendung verbesserter Vorhersagemodelle für die Wärmeübertragung in Oxy-Fuel-Thermoprozessanlagen Energie eingespart werden, da Verbrennungsraum und Wärmegut optimal aufeinander abgestimmt werden können. Gerade in Oxy-Fuel-Flammen ist die Kenntnis der Konzentrations- und Temperaturverteilung von enormer Bedeutung, da hier hauptsächlich die CO₂- und H₂O-Spezies für die Wärmeübertragung durch Gasstrahlung verantwortlich sind. Durch die hohen Temperaturen in Oxy-Fuel-Flammen dominiert bei der Wärmeübertragung der Strahlungsanteil. Durch die Anwendung effizienter Vorhersagemodelle kann Primärenergie eingespart und somit auch der CO₂-Ausstoß drastisch reduziert werden.
- c) Aus ökologischer Sicht kann durch die Verwendung von Oxy-Fuel-Systemen Energie eingespart werden. Somit können die gesetzten Klimaschutzziele der Bundesregierung, den CO₂-Ausstoß zu reduzieren, ein Stück weit realisiert werden. Ein zweiter Punkt ist die Einhaltung von Grenzwerten von Schadstoffemissionen. Auch hier hat Deutschland eine Vorreiterrolle inne. Durch die Verwendung von Oxy-Fuel-Systemen kann bei richtiger Prozessführung der NO_x-Ausstoß von Thermoprozessanlagen erheblich reduziert werden. Dies in Kombination mit einer Reduzierung des CO₂-Ausstoßes schont die Umwelt nachhaltig.

Die im Rahmen dieses Forschungsvorhabens geplante Entwicklung von zeiteffizienten und verlässlichen Verbrennungsmodellen für Oxy-Fuel-Verbrennung für eine industrielle Anwendung stellt einen innovativen Beitrag zur Weiterentwicklung der deutschen Industrie dar.

3.3. Lösungsweg zur Erreichung des Forschungsziels

Der Lösungsweg zum Erreichen der oben genannten Ziele ist sehr komplex, da hier reaktionskinetische Modellierung, die Einbindung von Reaktionsmodellen in CFD-Codes und die

aufwändige messtechnische Validierung der Modelle unter industriellen Randbedingungen eng miteinander verbunden sind und aufeinander aufbauen. Die geplante Vorgehensweise war nur durch die intensive Zusammenarbeit der involvierten Forschungsstellen - dem Gas- und Wärme-Institut Essen e. V. (GWI), der Ruhr-Universität Bochum (Lehrstuhl für Strömungsmechanik, LSTM), der Universität Duisburg-Essen (Lehrstuhl für Strömungsmechanik und Simulation reaktiver Strömungen SRF) und der Universität Siegen (Lehrstuhl für Technische Thermodynamik, TTS) - sowie durch die im projektbegleitenden Ausschuss mitarbeitenden Industriefirmen fachkundig und branchenübergreifend zu realisieren.

4. Grundlagen der Verbrennungsmodellierung in CFD

Ein Fokus der im Rahmen dieses Forschungsprojekts durchgeführten Arbeiten lag auf der numerischen Simulation der Prozesse in einer Oxy-Fuel-Feuerung. Die numerische Strömungssimulation hat sich in den letzten Jahren immer mehr zu einem wichtigem Werkzeug für Auslegung und Optimierung von Thermoprozessanlagen entwickelt.

In der Thermoprozesstechnik haben sich unterschiedliche CFD-Programme etabliert. Zum einen werden dort kommerziell erhältliche CFD-Programme (oft ANSYS FLUENT [58], [59]) verwendet, zum anderen gewinnen aber auch so genannte „open source“-Codes, hier insbesondere OpenFOAM ([60], [61] und Code_Saturne [62]), immer mehr an Bedeutung. Während kommerzielle Software-Pakete speziell auf die Anwendung im industriellen Entwicklungsprozess mit einer Reihe von bereits implementierten und auf ihre Funktionalität geprüften Modellen zugeschnitten sind und Erweiterungen lediglich über eine Reihe vordefinierter Schnittstellen (z. B. in Form von so genannten „user defined functions“ (UDF)) zulassen, ist bei „open source“-Programmen der gesamte Quell-Code frei zugänglich und kann - entsprechende Kenntnisse vorausgesetzt - verändert und angepasst werden. Dies ist, neben den Lizenzkosten für kommerzielle CFD-Programmpakete, ein wesentlicher Vorteil der „open source“-Software und macht sie insbesondere auch für die Modellentwicklung im akademischen Bereich interessant. Allerdings gestaltet sich die Handhabung solcher Software-Pakete derzeit noch weitaus weniger nutzerfreundlich als bei den kommerziellen Produkten und erfordert mehr Fachkenntnisse, nicht nur im Gebiet der Strömungsmechanik bzw. Feuerungstechnik, sondern insbesondere auch bei der Modellierung solcher Vorgänge und numerischer Lösungsmethoden.

Grundsätzlich handelt es bei fast allen im Thermoprozessbereich eingesetzten CFD-Codes um sogenannte Finite-Volumen-Verfahren wobei in der Regel gemittelte, stationäre Lösungen ermittelt werden. Dieser Ansatz wird als RANS-Ansatz (RANS: Reynolds-Averaged Navier Stokes) bezeichnet, da hier die aus den Newton'schen Gesetzen herleitbaren und für Kontinua uneingeschränkt gültigen instationären Navier-Stokes-Gleichungen in eine stationäre Form überführt werden. Zwar geht dabei die zeit-abhängige Charakteristik der Strömung verloren, allerdings lassen sich auf diese Weise der numerische Aufwand und die benötigten Hardware-Ressourcen dramatisch reduzieren. Durch den Einsatz von Turbulenzmodellen wird dabei der Einfluss der stochastisch-chaotischen Turbulenz auf das gemittelte Strömungsfeld mit Hilfe von quasi-empirischen Modellansätzen beschrieben. Solche RANS-Ansätze sind in der Simulation thermoprozesstechnischer Anlagen Stand der Technik und erlauben die Modellierung von reaktiven und hoch-turbulenten Strömungen in großen und komplexen Geometrien mit vertretbarem Aufwand [63].

Der wesentliche Arbeitsablauf ist sowohl bei kommerziellen als auch bei „open source“-Softwarepaketen annähernd gleich. Daher soll die generelle Vorgehensweise bei der Nutzung von CFD-Programmen anhand des Programmpakets FLUENT (siehe **Bild 8**) beschrieben werden.

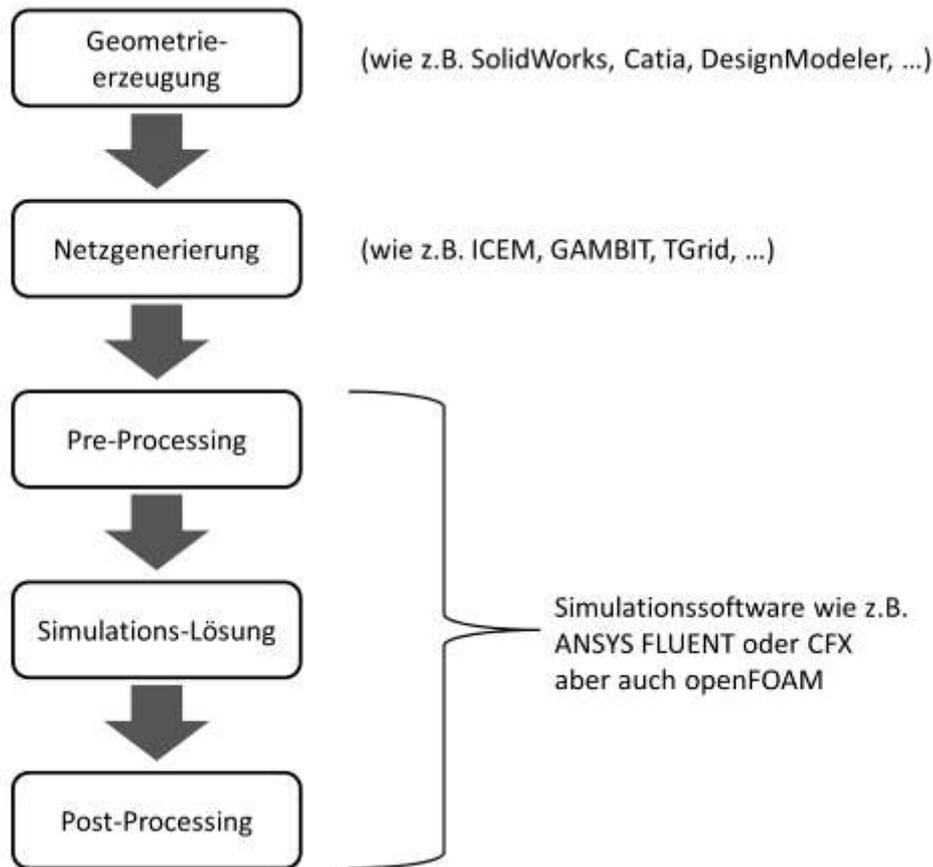


Bild 8: Arbeitsablauf bei der CFD-Simulation

Nachfolgend werden die Programmstruktur sowie die verwendeten Modelle für die Turbulenz, Wärmetransport und Verbrennung näher betrachtet. Gerade den Verbrennungsmodellen kommt in diesem Projekt eine herausragende Bedeutung zu.

Der erste Schritt bei der CFD-Simulation ist das so genannte Pre-Processing. Hier wird die zu simulierende Geometrie erstellt (oder anhand von 3D-CAD-Daten importiert und dann aufbereitet) und anschließend in viele kleine Kontrollvolumina, die sogenannten Zellen, unterteilt. Dies wird als Gittergenerierung oder auch Diskretisierung des Rechengebiets bezeichnet. Eine industrielle CFD-Simulation kann mehrere Millionen solcher Kontrollvolumina beinhalten, wobei in der Regel ein feiner aufgelöstes Rechengebiet zu qualitativ hochwertigeren Simulationsergebnissen führt. Allerdings ist die benötigte Rechenzeit zur Durchführung der Simulation proportional zum Quadrat der Anzahl der verwendeten Zellen, so dass hier ein Kompromiss zwischen erforderlicher Genauigkeit der Ergebnisse auf der einen Seite und dem aufzubringenden Aufwand in Bezug auf Hardware und Rechenzeit auf der anderen Seite notwendig ist.

Außerdem erfolgt im Rahmen des Pre-Processings die Auswahl geeigneter Modelle (für Turbulenz, Verbrennung, Strahlung etc.) und Lösungsalgorithmen. Auch die Randbedingungen (Massenströme, Wandtemperaturen oder -wärmeflüsse, Stoffzusammensetzungen und dergleichen) werden im Pre-Processing festgelegt.

Die Basis der mathematischen Modellierung zur Bestimmung der Strömungs- und Wärme-prozesse in FLUENT sind die stationären partiellen Differentialgleichungen für die Bilanzen der Massen-, Stoff-, Impuls- und Energieflüsse, basierend auf dem RANS-Ansatz. Dieses konservative Gleichungssystem wird in den einzelnen Zellen des diskretisierten Berechnungs-raumes iterativ mit Hilfe numerischer Methoden gelöst, auf die hier nicht weiter eingegan-gen werden soll. Für detaillierte Ausführungen sei auf die entsprechende Literatur verwiesen [64], [65], [66], [67].

Sobald eine belastbare Lösung des Gleichungssystems erreicht wurde, kann das Post-Processing erfolgen, also die Auswertung der Simulation anhand einer Datenvisualisierung. Von entscheidender Bedeutung für diese Form der Strömungssimulation ist die Auswahl geeigneter Modelle für verschiedene physikalisch-chemische Vorgänge, wobei im Rahmen dieses Projekts insbesondere die Modellierung des Verbrennungsvorgangs kritisch ist. Daher sollen im Folgenden einige typische Ansätze zur Verbrennungsmodellierung im Kontext der RANS-Simulation (die weitaus häufigste Form der CFD-Simulation im Bereich der Verfahrenstechnik) angerissen werden. Für eine Beschreibung von Turbulenz- und Wärmeübertra-gungsmodellen sowie detailliertere Erläuterung gängiger Verbrennungsmodelle sei auf die einschlägige Literatur verwiesen.

4.1. Verbrennungsmodellierung

Unter Verbrennungsmodellierung versteht man allgemein die Berechnung der lokalen Wär-mefreisetzung und Konzentrationsverteilungen chemischer Spezies aufgrund von Verbren-nungsvorgängen im Rechengebiet.

In der Simulation von Prozessen und Anlagen der Thermoprozesstechnik haben sich hier zwei unterschiedliche Vorgehensweisen etabliert.

4.1.1. Wirbelzerfallsmodelle

Eine Möglichkeit ist, Bilanzgleichungen für jede chemische Spezies eines stark reduzierten Reaktionsmechanismus zu lösen. Diese Gleichungen, die mathematisch formal den stationären RANS-Gleichungen entsprechen, beschreiben alle physikalischen und chemischen Vor-gänge, die die Konzentrationen beeinflussen, also Konvektion, Diffusion und die chemische Reaktion (durch Quellen- und Senkenterme der jeweiligen Spezies) selbst.

Für einen schnellen und vollständigen chemischen Umsatz müssen die Reaktionspartner auf molekularer Ebene möglichst gut vermischt werden, da ein Molekül nur dann an einem chemischen Stoffumwandlungsprozess teilnehmen kann, wenn es mit seinem Reaktions-partner kollidiert. Ist die Mischungsbedingung erfüllt, läuft die Reaktion mit einer bestimm-ten Geschwindigkeit ab, die von einer Vielzahl von lokalen Einflussgrößen (etwa Druck, Tem-peratur, Stoffgemisch etc.) abhängig ist.

Die Oxidation des Brennstoffes kann im Modell entweder durch die Mischung der Reakti-onspartner aufgrund der turbulenten Strömung oder die chemische Reaktion limitiert sein. Man spricht dann von mischungs- bzw. von kinetisch-kontrollierter Umsetzung. Zur Charak-

terisierung der vorliegenden Verhältnisse dient die Damköhler-Zahl Da , die als Verhältnis zwischen einem turbulenten Zeitmaß, das eine entsprechende Mischzeit beschreibt und einer charakteristischen Reaktionszeit definiert ist. Genauere Erläuterungen dieser Modellierungsstrategie können u. a. in [68], [69] gefunden werden. Allgemein werden diese Modelle als Wirbelzerfallsmodelle bezeichnet, weil die Wirbellebendauer, die sich aus der Modellierung der turbulenten Strömung ableiten lässt, als Zeitmaß zur Beschreibung der Verbrennung genutzt wird.

In FLUENT wird die oben beschriebene Vorgehensweise zur Modellierung der Reaktion als „generalized finite rate formulation“ bezeichnet. Es werden Transportgleichungen für alle Spezies gelöst, die an der chemischen Umsetzung beteiligt sind, wobei die chemischen Prozesse anhand eines stark reduzierten Reaktionsmechanismus abgebildet werden. Die Bestimmung der Reaktionsraten kann über den Arrhenius-„finite rate“- oder mit dem Eddy-Dissipation-Ansatz [70], [69], [71] geschehen, wobei der Arrhenius-Ansatz für eine kinetisch- und der Eddy Dissipation-Ansatz für eine Mischungskontrollierte Umsetzung steht. Aufgrund dieser Vorgehensweise werden meist nur Ein-, Zwei- oder Vierschrittmechanismen von Modellbrennstoffen, z. B. Methan anstelle von Erdgas, berücksichtigt, um die Anzahl der zu lösenden Transportgleichungen und damit den numerischen Aufwand zu begrenzen. Über Reaktionskonstanten für die Berechnung der Reaktionsraten kann die Flammenform angepasst werden. Durch eine Kopplung von kinetisch kontrollierten und Eddy Dissipation-Ansätzen ist es zudem möglich, den jeweils lokal limitierenden Ansatz zur Berechnung der Stoffumwandlung zu verwenden.

Bezüglich der Anwendbarkeit ist die Verfügbarkeit geeigneter reduzierter Reaktionsmechanismen und damit die Anzahl der zu lösenden Transportgleichungen für chemische Spezies der entscheidende Faktor, weil diese sich unmittelbar auf die Rechenzeit auswirkt. Stark reduzierte Mechanismen sind in ihrem Anwendungsbereich u. U. erheblich eingeschränkt und zudem außerhalb dieser Grenzen nicht validiert, was zu unphysikalischen Ergebnissen führen kann. Dies war zum Beispiel bei den Simulationen mit 2- und 4-Schritt-Mechanismen im Rahmen des Forschungsprojekts „O₂-Glaswanne“ [43] der Fall.

Eine Weiterentwicklung der bisher vorgestellten Wirbelzerfallsmodelle stellt das sogenannte Eddy-Dissipation Concept (EDC) [71] dar. Dieses Verfahren bringt zwei Vorteile mit sich: Zum einen kann die Mikro-Struktur der Flamme durch die Einführung einer Feinstrukturbeachtung als so genanntes „sub-grid“-Modell realitätsgetreuer wiedergegeben werden. Betrachtet man industriell relevante Flammen, so spielen sich die chemischen Prozesse einer Verbrennung meist auf Längenskalen ab, die erheblich kleiner sind als die kleinsten Zellen des numerischen Gitters, welches einem RANS-Verfahren üblicherweise zugrunde liegt. Beim EDC wird daher lokal für jede Zelle anhand von Informationen des Turbulenzmodells ermittelt, welcher Bruchteil des Zellvolumens für die Beschreibung der chemischen Prozesse berücksichtigt werden muss. Dieses Teilvolumen geht dann in eine, verglichen mit den bisher vorgestellten Wirbelzerfallsmodellen, sehr detaillierte reaktionskinetische Beschreibung auf Basis eines „Perfectly Stirred Reactor“-Modells (PSR) [72] als Randbedingung ein. Die zweite

für den PSR wichtige Randbedingung, nämlich die Aufenthaltszeit, wird ebenfalls lokal mit Hilfe des Turbulenzmodells bestimmt. Auf diese Weise können die reaktionskinetischen Zeitskalen, die in die Beschreibung der Verbrennungsprozesse eingehen, erheblich besser abgebildet werden, was gerade bei unkonventionellen Verbrennungssystemen mitunter notwendig sein kann.

Der zweite Vorteil dieses Modells ist, dass erheblich umfangreichere und damit weniger beschränkte reduzierte Reaktionsmechanismen verwendet werden können, ohne dass Probleme mit Konvergenzverhalten und -stabilität auftreten. In der Tat erfordert diese Form der Verbrennungsmodellierung umfangreichere Mechanismen, weil das Verhalten chemischer Radikale und Zwischenspezies (insbesondere OH, H und O) weitaus stärker in die Modellierung einfließt.

Nachteilig ist der erheblich höhere numerische Aufwand, der sich durch die Lösung zusätzlicher Speziestransportgleichungen sowie den ungleich höheren Aufwand zur Bestimmung der Quellterme für diese Speziesgleichungen aufgrund umfangreicherer Reaktionsmechanismen und steifer Gleichungssysteme ergibt. Des Weiteren ist dieses Verbrennungsmodell weitaus empfindlicher bzgl. der Qualität der Startlösung des Systems und der Auswahl geeigneter reduzierter Reaktionsmechanismen.

Der höhere Rechenzeit- und Speicherbedarf sowie das kompliziertere Handling sind derzeit die wesentlichen Gründe, warum dieses detailliertere Reaktionsmodell sich noch nicht als Standard-Verfahren für Thermoprozesse hat durchsetzen können.

4.1.2. Tabellenbasierte Verbrennungsmodelle

Eine vollkommen andere Möglichkeit, Verbrennungsvorgänge abzubilden, stellen tabellenbasierte Verfahren auf Grundlage einer „assumed shape“-PDF (PDF: probability density function, Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion), die von einer Betrachtung charakteristischer Zeitskalen ausgehen, dar. Die bekanntesten und am meisten verbreiteten Modelle dieser Art sind das PDF-Gleichgewichtsmodell (siehe z. B. [73] für eine detailliertere Beschreibung) und die PDF-Flamelet-Modelle ([38], [39], [74]) Diese Modelle basieren auf der Annahme, dass sich in nicht-vorgemischten Flammen die chemischen Prozesse, wenn man von langsamen Prozessen der Schadstoffbildung einmal absieht (z. B. bei NO_x), in der Regel sehr viel schneller abspielen als die physikalischen Prozesse der Mischung und turbulenten Strömung [18] (siehe auch **Bild 9**). Daher kann man für solche Systeme die chemischen und physikalischen Prozesse als voneinander entkoppelt betrachten, wobei der Mischungsprozess der limitierende Faktor ist. Hat sich ein bestimmter Mischungszustand einmal eingestellt, findet - entsprechend dieser Modellannahme - die Verbrennung quasi unmittelbar statt. Insofern ist es nach dieser Modellvorstellung ausreichend, nur den Mischungszustand zwischen Brennstoff und Oxidator im Rahmen der CFD-Simulation zu bestimmen, wobei dieser Mischungszustand über den Mischungsbruch Z (engl. mixture fraction), also das Verhältnis von Brennstoffmasse zur Gesamtmasse (analog ausgedrückt über die Massenbrüche Y_i) in einer Zelle bei einer nicht-reagierenden Strömung, beschrieben wird.

$$Z = \frac{Y_{Fuel}}{Y_{fuel} + Y_{Oxidizer}}$$

Ausgehend vom Mischungs- und Enthalpiezustand in jeder Zelle des Rechengebiets kann dann mit Hilfe einer Chemie-Datentabelle ein chemischer Zustand im Nachgang eindeutig bestimmt werden. Diese chemische Datenbank wird vor der eigentlichen CFD-Simulation mit Hilfe umfangreicher Reaktionsmechanismen, thermodynamischer Datenbanken und mehr oder weniger detaillierter chemischer Modelle angelegt. Beim Equilibrium-PDF-Ansatz [18], [73] kommt hier die Annahme des chemischen Gleichgewichts zum Einsatz, aber auch detailliertere reaktionskinetische Modelle, wie etwa Flamelets [74], werden zur Erzeugung der Chemie-Datentabellen von FLUENT angeboten.

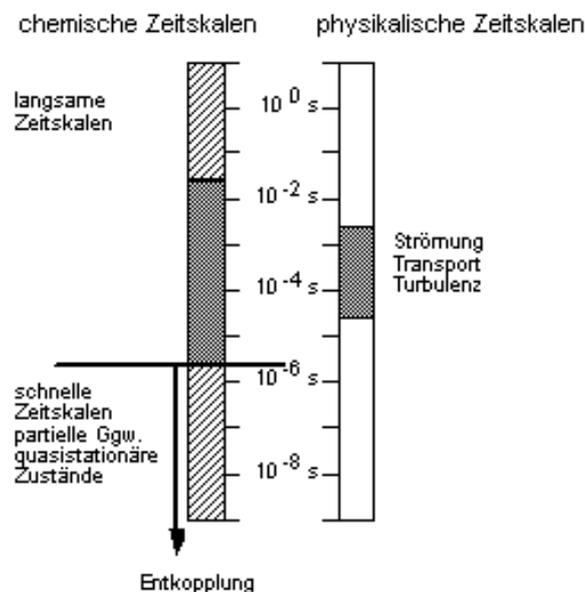


Bild 9: Typische Zeitskalen in Verbrennungsprozessen [18]

Die Flamelet-Modelle spielen im Rahmen dieses Forschungsvorhabens eine besondere Rolle, daher sollen sie im Folgenden etwas detaillierter erläutert werden. Unter der oben beschriebenen Annahme, dass sich bei einem nicht-vorgemischten Verbrennungsprozess die wesentlichen chemischen Stoffumwandlungsprozesse sehr viel schneller abspielen als die turbulente Mischung (was für viele technisch relevante Feuerungssysteme der Fall ist), wird die Flammenfront, also der Bereich, in dem die Wärmefreisetzung größtenteils stattfindet, sich dort etablieren, wo lokal ein ungefähr stöchiometrisches Gemisch von Brennstoff und Oxidator vorliegt. Das stationäre laminare Flamelet-Modell (SLFM: steady laminar flamelet model) [74] besagt nun, dass die lokalen Prozesse der Wärmefreisetzung und Stoffumwandlung in der Flammenfront näherungsweise durch ein Ensemble eindimensionaler Flamelets abgebildet werden kann. Solch eine Konfiguration ist mit Hilfe eines „opposing flows“-Reaktormodells recht simpel abzubilden, wobei bei dieser Modellbeschreibung die einzige Dimension der axiale Abstand zwischen beiden Düsen ist. Durch eine Koordinatentransfor-

mation kann nun die geometrische Dimension „Düsenabstand“ in den Mischungsbruch überführt werden. **Bild 10** veranschaulicht diese Modellierungsstrategie. Anhand der Geschwindigkeiten, mit denen die beiden Massenströme aus den Düsen des Modellreaktors austreten, kann zudem eine Streckungsrate (strain rate) bestimmt werden, was, übertragen auf die turbulente Flamme im realen technischen System eine Möglichkeit darstellt, die Turbulenz/Chemie-Interaktion bis hin zur Flammverlöschung aufgrund zu hoher lokaler Turbulenz zu modellieren. Durch die Berechnung einer großen Anzahl von Flamelet-Rechnungen mit verschiedenen Randbedingungen für Streckungsrate und lokalen Wärmeverlust kann auf diese Weise eine dreidimensionale Chemiedatenbank (mit den Dimensionen Mischungsbruch, Streckungsrate und Wärmeverlust) erzeugt werden, die dem CFD-Code die relevanten chemie-abhängigen Größen zur Verfügung stellt.

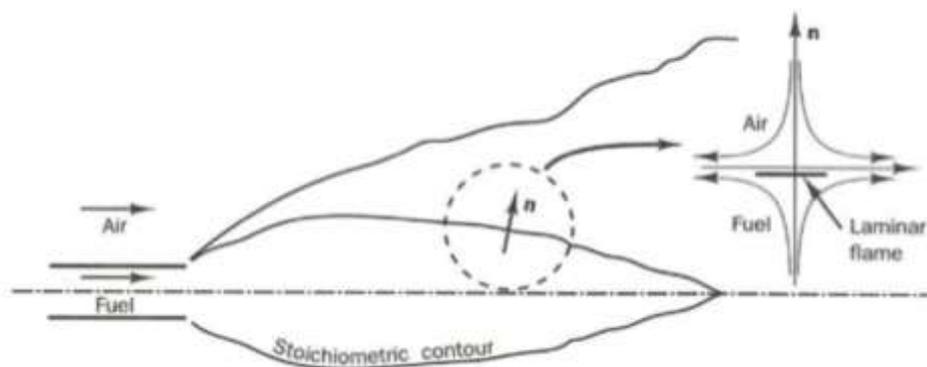


Bild 10: Veranschaulichung des Steady Laminar Flamelet-Modells für nicht-vorgemischte turbulente Flammen [67]

Während der CFD-Simulation selbst werden dann lediglich Transportgleichungen für den Mittelwert des Mischungsbruchs sowie für die mittlere Varianz des Mischungsbruchs gelöst, unabhängig von der chemischen Komplexität des untersuchten chemischen Systems. Da diese Reaktionsmodelle auch auf nicht-adiabate Systeme anwendbar sein sollen, werden die chemischen Datenbanken neben Mischungsbruch und Mischungsbruchvarianz auch über die lokale Enthalpie aufgezogen, um verschiedene Energieniveaus abbilden zu können. Die Streckungsrate, die im Falle von Flamelet-Modellen benötigt wird, kann unmittelbar aus dem Turbulenzmodell abgegriffen werden und erfordert somit keine eigene Transportgleichung. Mit Hilfe von PDF-Wichtungungsverfahren wird der Einfluss der Turbulenz auf die Reaktion im Mikro-Skalenbereich modelliert. In den meisten gängigen CFD-Codes kommt hier eine β -PDF zum Einsatz (siehe z. B. [42], [75]).

Der Vorteil dieser tabellenbasierten Vorgehensweisen ist, dass die Verbrennung einer Vielzahl sehr unterschiedlicher Brennstoffe in konsistenter Weise modelliert werden kann. Da die chemischen Modelle, mit denen die Chemie-Datenbanken erzeugt werden, meist keinen großen numerischen Aufwand erfordern, können hier umfangreiche Reaktionsmechanismen verwendet werden. Fragen hinsichtlich der Anwendungsgrenzen von reduzierten Reaktionsmechanismen, die bei den Wirbelzerfallsmodellen ein großes Problem darstellen können, ergeben sich bei dieser Form der Verbrennungsmodellierung somit nicht. Allerdings zeigt die Praxis, dass bei diesen tabellenbasierten Verbrennungsmodellen der Einfluss der Wär-

meauskopplung auf die chemischen Prozesse mitunter nur unzureichend wiedergegeben wird, z. B. in [76]. Dies kann insbesondere bei Oxy-Fuel-Prozessen, bei denen der lokale Wärmeverlust eine noch größere Rolle spielt als bei klassischen Erdgas-Luft-Flammen, ein Problem sein, falls dies nicht bei der Tabellenerzeugung berücksichtigt wird.

5. Experimentelle Grundlagen

Im folgenden Kapitel werden die im Rahmen dieses Forschungsvorhabens verwendeten Versuchsanlagen sowie die den experimentellen Untersuchungen zu Grunde liegenden Messverfahren und -geräte eingehender beschrieben.

5.1. Semi-industrieller Brennerprüfstand am GWI

In **Bild 11** ist einer der semi-industriellen Brennerprüfstände des GWI dargestellt. An dieser Anlage können die Bedingungen des Verbrennungsvorgangs in Thermoprozessanlagen nachgestellt werden. Gleichzeitig ist die Anlage, im Gegensatz zu industriell genutzten Produktionsanlagen, speziell auf eine gute messtechnische Zugänglichkeit hin ausgelegt worden.

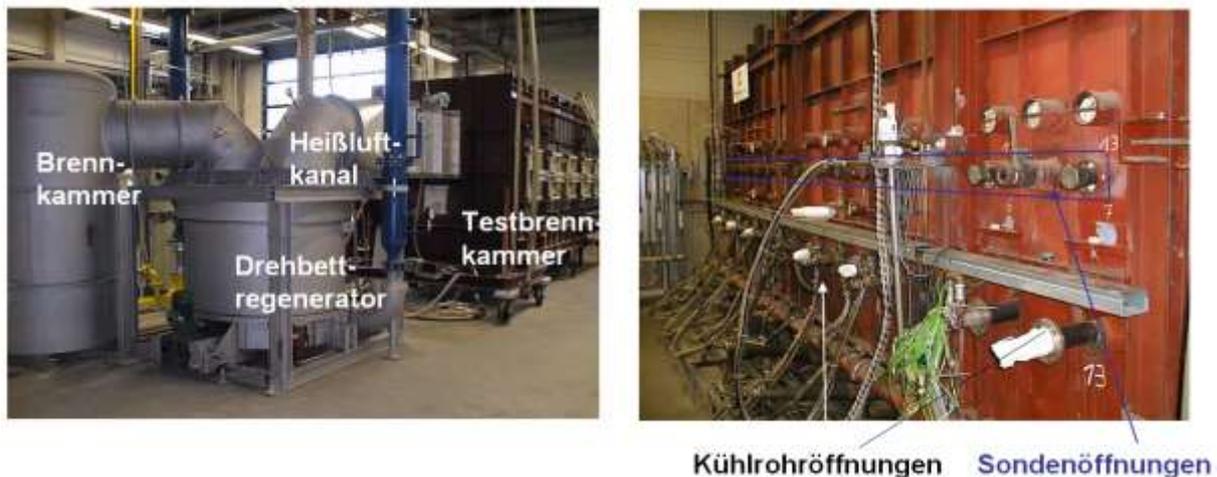


Bild 11 GWI-Hochtemperaturversuchsanlage (Quelle: GWI)

Mit Hilfe des Drehbettregenerators sind Luftvorwärmtemperaturen bis zu 1350 °C realisierbar, was jedoch für das in diesem Bericht beschriebene Forschungsvorhaben nicht von Bedeutung ist. Die Anlage ist jedoch auch mit einem großen Sauerstofftank inkl. Verdampfer verbunden, um thermoprozesstechnische Oxy-Fuel-Verbrennungsprozesse darstellen zu können.

Die Begrenzungen für die Ofenwandtemperatur liegen 1600 und 1650 °C. Betriebserfahrungen aus vorangegangenen Projekten zeigen, dass hierdurch die Brennerleistung für Oxy-Fuel-Brenner auf etwa 400 kW beschränkt wird, ob die Anlage eigentlich für Brennerleistungen von bis zu 1,2 MW (bei Betrieb mit vorgewärmter Luft) ausgelegt ist.

Durch das Einbringen von Kühlrohren kann die Ofenraumtemperatur konstant auf einem definierten Niveau gehalten werden. Diese Kühlrohre dienen außerdem dazu, eine Wärmelast in den Ofen einzubringen, analog etwa zu Schmelzprozessen, bei denen die Schmelze ja ebenfalls Wärme aus dem Feuerungsraum aufnimmt. Auf diese Weise können die Bedingungen in einem Industrieofen realistisch wiedergegeben werden.

Die im rechten Bild sichtbaren Sondenöffnungen erlauben Feldmessungen der Temperaturen und Spezieskonzentration (CO , CO_2 , NO_x , O_2 , ...) in der horizontalen Brennerebene sowie von Strahlungswärmefluss-Messungen über die gesamte Ofenlänge und -breite mit Hilfe von

Sonden. Hierdurch können detaillierte Daten - auch im Brennernahbereich - messtechnisch erfasst werden, um einerseits Validierungsdaten für die numerische Simulation zu erhalten und andererseits Vorgänge, die im Inneren der des Feuerungsraumes stattfinden, transparenter darzustellen. Die Messmethoden werden in den nachfolgenden Abschnitten detaillierter erläutert.

Bild 12 zeigt den Messplan, der den Speziesfeldmessungen zugrunde liegt. Dabei werden 14 axiale und zwischen sechs und 16 transversale Messpunkte angefahren, um auf diese Weise eine zweidimensionale Verteilung der gemessenen Größen zu erhalten. Dabei liegen im Brennernahbereich mehr Messpunkte als weiter stromab, um auf diese Weise einen detaillierteren Einblick in die Prozesse in der Nähe der Flamme zu erhalten.

In **Bild 13** ist u. a. die Messebene zu sehen, die auf diese Weise untersucht wird.

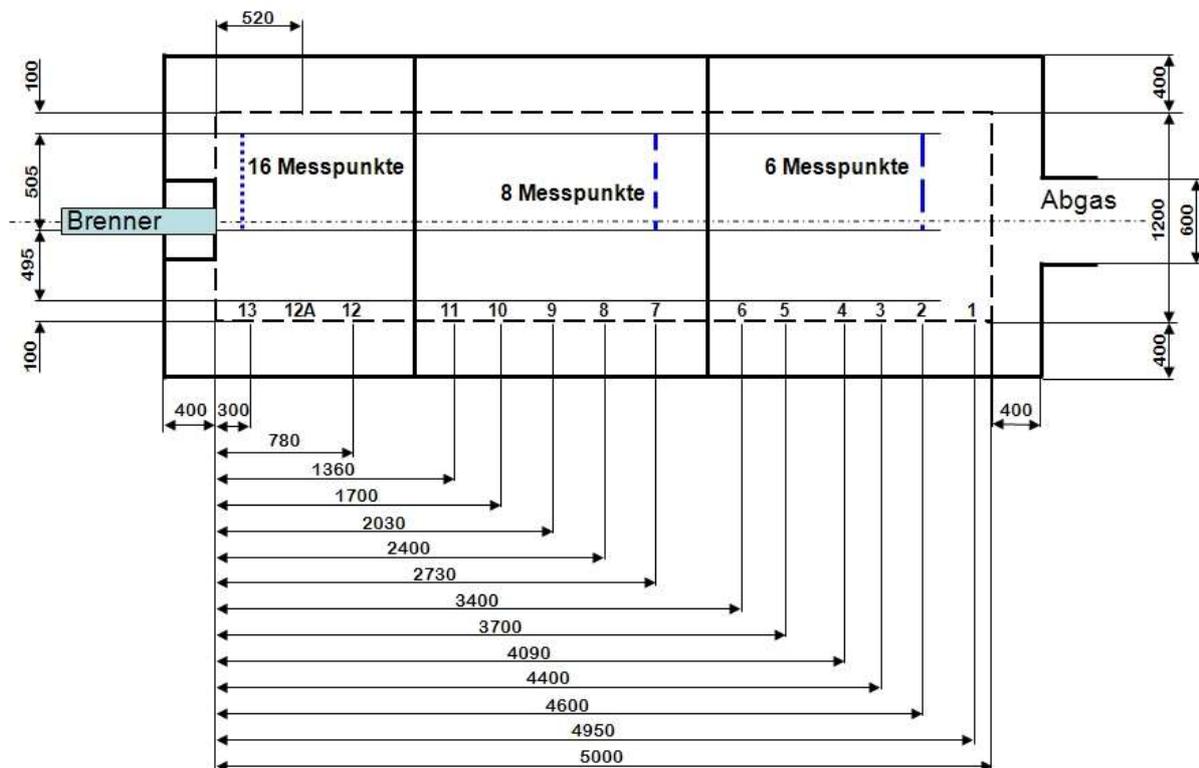


Bild 102: Messplan der Feldmessungen (Quelle: GWI)

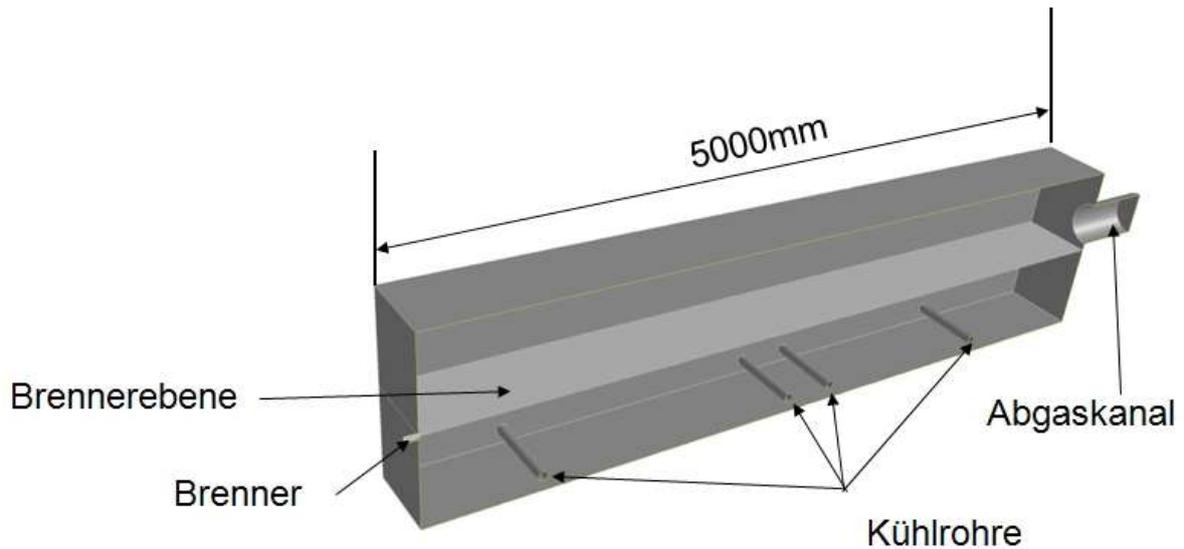


Bild 113: Messebene am GWI-Versuchsstand (Quelle: GWI)

An der oben beschriebenen GWI-Versuchsanlage können verschiedene Stirnwände angebracht werden, mit denen sowohl mittig angeordnete Brenner als auch die für zum Beispiel für die Glasindustrie typischen Brennerports adaptiert werden können.



Bild 14: GWI-Versuchsstand mit Schauöffnungen

Die für die CARS-Messungen wichtigen optischen Zugänge zum Brennerprüfstand sind in **Bild 14** zu sehen.

6. Modellentwicklung für Oxy-Fuel-Verbrennungsvorgänge

Wie bereits angesprochen, können Reaktionsmodelle für CFD-Simulationen von industriellen Feuerungsprozessen im allgemeinen in zwei Modellfamilien eingeteilt werden, Wirbelzerfallsmodelle in Kombination mit stark reduzierten Reaktionsmechanismen und Modelle, die auf Chemiedatenbanken basieren. Beide Modellierungsstrategien haben in der Praxis ihre jeweiligen Vor- und Nachteile, daher wurden im Rahmen dieses Forschungsvorhabens beide Modellierungsstrategien für die verbesserte Beschreibung von Oxy-Fuel-Verbrennungsvorgängen von den Forschungsstellen in Duisburg und Bochum verfolgt.

6.1. Entwicklung stark reduzierter Reaktionsmechanismen für die Beschreibung von Oxy-Fuel-Flammen

Die nachfolgend beschriebenen Arbeitsschritte wurden am Lehrstuhl für Strömungsmechanik (Prof. Dr.-Ing. B. Rogg) der Ruhr-Universität Bochum durchgeführt. Aufgrund eines schweren und langwierigen Krankheitsfalls gegen Ende der Projektlaufzeit konnte die Dokumentation dieser Arbeitspakete leider nur in englischer Sprache erfolgen, da es dem zuständigen ausländischen Mitarbeiter des Lehrstuhls leichter fällt, komplexe Sachverhalte auf Englisch zu beschreiben.

Detailed chemical mechanisms are generally valid over a wide range of conditions such as pressure, equivalence ratio or high and low temperatures. Consequently, they contain from dozen to several hundred species and from hundred to several thousand species. For example, the GRI 3.0 chemical mechanism [29] contains 53 species and 325 reactions, while other common detailed mechanisms such as the Kee mechanism [45] and the Glarborg mechanism [77], [78], [79] consist of 17 species / 58 elementary reactions and 97 species / 779 elementary reactions respectively.

The incorporation of such detailed mechanisms in simulation of complex reacting flows or turbulent combustion leads to significant computational cost. Drastically reduced kinetic schemes, however, such as the ones by Westbrook and Dryer [30] or Jones and Lindstedt [31] (with six species and two reactions or seven species and 4 reactions respectively), originally derived for combustion in air and commonly used in CFD software, inaccurately predict temperature peak and CO species mole fraction profiles when used in oxy-fuel conditions [80]. Therefore, one objective of this investigation is to derive reduced mechanisms for the numerical simulation of turbulent diffusion flames in oxy-fuel conditions.

6.1.1. Choice of suitable detailed reaction mechanism for oxy-fuel combustion

The first step for developing a reduced reaction scheme is to find a suitable detailed reaction mechanism from which to start the reduction procedure. For this purpose, Methane diffusion flames have been simulated in the mixture fraction space with different detailed mechanisms, namely, GRI 3.0, Kee and Glarborg mechanisms. In **Bild 15**, a systematic comparison of numerical results with existing experimental data [81] shows a better

agreement between GRI3.0 predictions and experimental data. As consequence, GRI 3.0 was selected as the starting mechanism for the development of a non-adiabatic flamelet library and a reduced mechanism for numerical modeling of turbulent diffusion flames in the context of oxyfuel combustion. It is worth to mention that flames simulations with 100 % CH₄ - 100 % O₂ were not validated due to the lack of experimental data for this case. The oxy-fuel diffusion flame case 100 % O₂ vs 20 % CH₄- 80 % N₂ is, to the best of the investigators' knowledge, the only one dimensional counterflow oxy-fuel flame case with experimental data validated against the GRI 3.0 mechanism. One-dimensional counterflow flames are needed because in the flamelet approach, a turbulent diffusion flame is described as an ensemble of locally thin one-dimensional flames embedded in the turbulent flow. Bennett and al.[82] used GRI 3.0 as the starting detailed mechanism in their investigations of two dimensional oxyfuel axisymmetric laminar methane flames. Bennett's two dimensional oxyfuel flames composition are as follows. Flame 2: 65 % CH₄- 35 % N₂ and 100 % O₂ and Flame 3: 20 % CH₄- 80 % N₂ and 100 % O₂.

Bild 16 and **Bild 17** show that predicted major species mole fraction and temperature profiles obtained with GRI 3.0 match experimental data from [81] with a good accuracy.

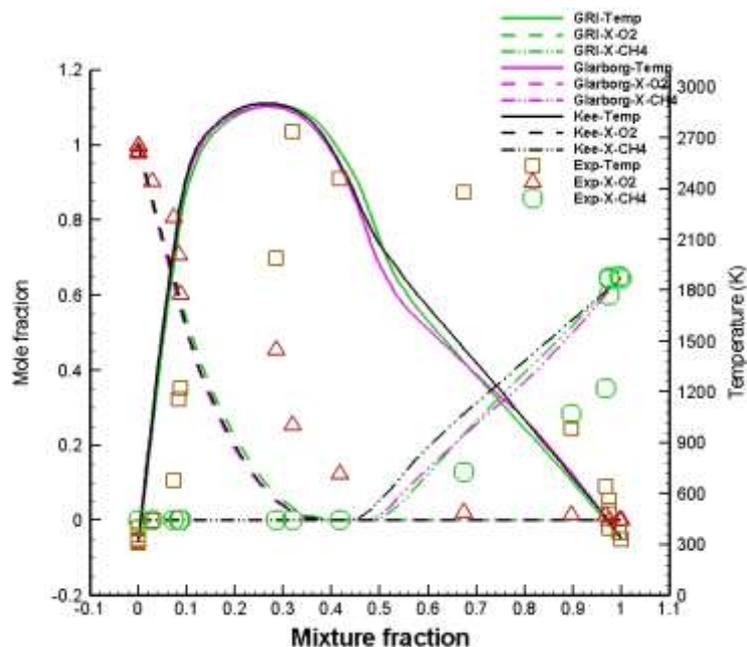


Bild 15: Experimental and numerical profiles of major species (CH₄, O₂) and temperature using GRI 3.0, Giarborg and Kee mechanisms for an oxy-fuel diffusion flame

Based on these preliminary investigations, it was found that the GRI 3.0 reaction mechanism [29] with 53 species and 325 elementary reactions is a suitable candidate for the following reduction procedure.

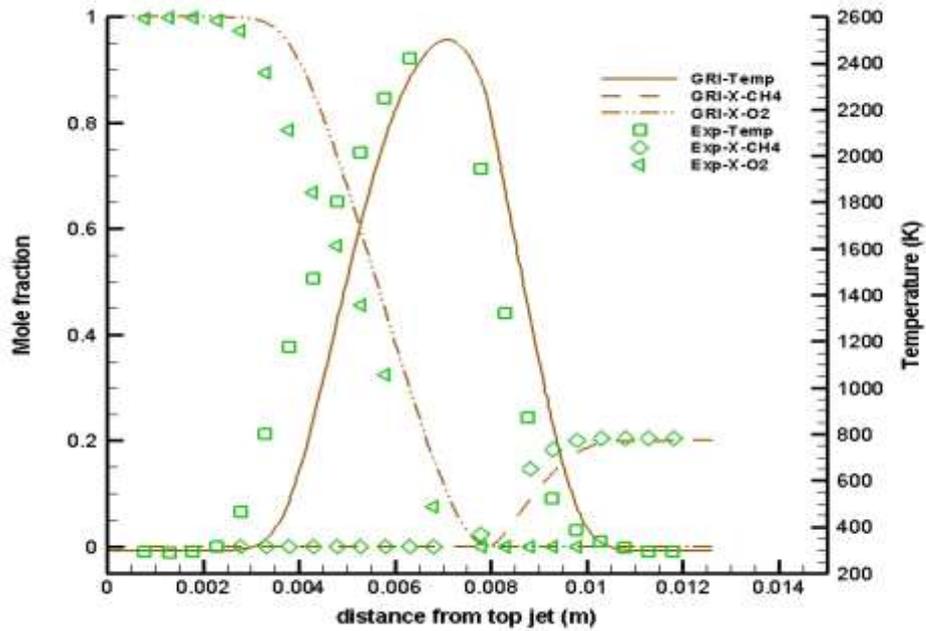


Bild 16: Comparison of predictions of species (CH_4 , O_2) mole fraction and temperature profiles calculated from GRI 3.0 mechanism and experimental data [81] for an oxy-fuel diffusion flame: 100 % O_2 vs 20 % CH_4 - 80 % N_2

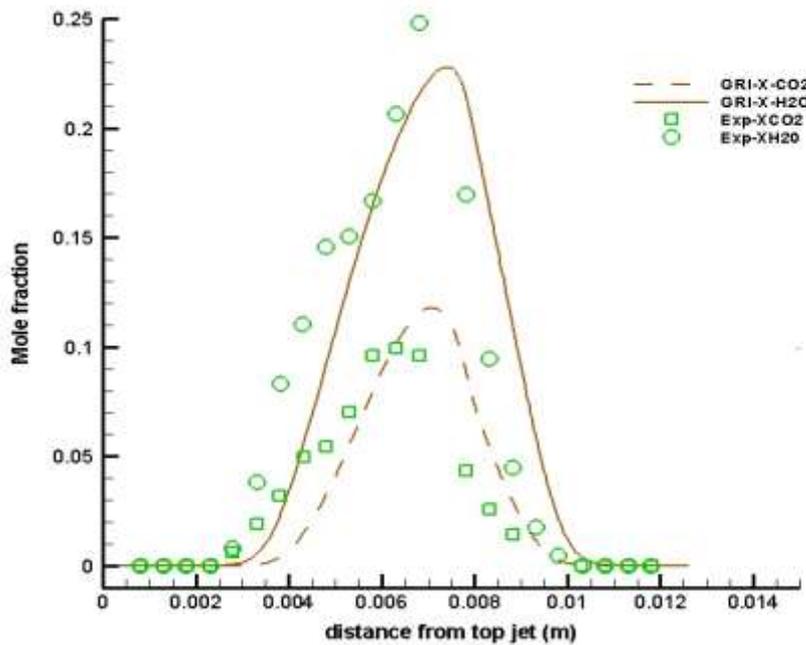


Bild 17: Comparison of predictions of species (CO_2 , H_2O) mole fraction profiles calculated from GRI 3.0 mechanism and experimental data [81] for an oxy-fuel diffusion flame: 100 % O_2 vs 20 % CH_4 – 80 % N_2

6.1.2. Development of a reduced reaction mechanism for oxy-fuel combustion

Chemical mechanism reduction is a process which enables the removal of unimportant species and reactions from detailed mechanism without a significant loss of accuracy. The chemistry description level is reduced in two steps:

- In a first step, the GRI3.0 mechanism is reduced to a so-called skeletal mechanism. A combination of Directed Relation Graph (DRG) [83], [84], DRG-aided sensitivity analysis (DRGASA) [85] and Unimportant Reaction Elimination [86] methods yields a 21-species and 39-reaction skeletal mechanism for low-strained diffusion flames.
- In a second step, Quasi-Steady State Approximation (QSSSA) [87] was used to further reduce the skeletal mechanism. The QSSA assumes that a species is in steady state if the following two conditions are fulfilled [88]:
 - The species concentration remains low,
 - Transport (Convection and diffusion) and time derivative terms of the species governing equations are negligible compared the chemical term.

This assumption is usually applied to intermediates species such as radicals. With four species identified as good steady state candidates, a 12-step-mechanism was generated.

In the following, the principles of these reduction techniques will be described in more detail.

Directed Relation Graph method (DRG)

DRG evaluates the coupling between pair of species in a chemical mechanism. Basically in this method, the direct influence of a species A on a species B is defined as:

$$r_{AB} = \frac{\sum_{i=1}^I |v_{A,i} \omega_i \delta_{Bi}|}{\sum_{i=1}^I |v_{A,i} \omega_i|}$$

$$\delta_{Bi} = \begin{cases} 1 & \text{if the } i\text{th elementary reaction} \\ & \text{involves species B} \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases}$$

Where ω_i is the rate-of-progress of the i^{th} reaction and I the number of reactions.

If r_{AB} is larger than a user-specified threshold value, species B is important for the production rate of species A and it should be kept if species A is retained in the skeletal mechanism. Otherwise, species B is unimportant to A. Usually in DRG, the set of starting includes important species such as fuel, oxidizer and inert species and all the species strongly connected directly or indirectly to the starting species constitute the species set of the skeletal mechanism. Elementary reactions which do not contain any of the retained species are removed from the initial mechanism.

DRG-Aided Sensitivity Analysis (DRGASA)

Skeletal mechanisms derived with the DRG method are not the smallest possible ones for a specific reacting system. Unimportant species can be further identified and removed from DRG-deduced skeletal mechanisms with the DRG-aided sensitivity analysis (DRGASA) method. The DRGASA procedure can be summarized as follows [85]:

1. Compute the relative error E_i induced to target global parameters (e. g. temperature profile or NO concentration) due to the elimination of each species “ i ” contained in the skeletal mechanism derived with DRG.

The relative error is defined by

$$E_i = \text{MAXIMUM}_{x \in D} \frac{|x - x_0|}{x}$$

Where x denotes the species concentration calculated with the original skeletal mechanism, x_0 is the species concentration calculated with the modified skeletal mechanism and D is either the temporal or spatial domain.

2. Species are sorted by their E_i values in ascending order,
3. Choose the species with the smallest relative error E_i ,
4. Create a new skeletal mechanism by removing the species selected from the original skeletal mechanism. Re-run the governing equations of the reacting system and recalculate the relative error E_i .

If E_i is smaller or equal a user-defined threshold, the i^{th} species is eliminated from the skeletal mechanism,

Repeat steps 3-4 until the relative error E_i is greater than a user specified threshold.

Unimportant Reaction Elimination Method

Unimportant reactions, viz. reactions which are not important to any species involved in a DRGASA-deduced mechanism, are identified after the DRG and DRGASA steps. The Reaction Importance Index $I_{k,i}$ as defined by Lu and Law [86] is used to find these reactions.

The Reaction Importance Index $I_{k,i}$ is taken from [86]:

$$I_{k,i} = \frac{|v_{k,i}\omega_i|}{\sum_{j=1}^I |v_{k,j}\omega_j|}$$

where $I_{k,i}$ is the importance index of the i^{th} reaction to the production rate of the k^{th} species, ω_i is the rate-of-progress of the i^{th} reaction and I the number of reactions.

If $I_{k,i}$ is larger than a user-specified threshold for all species, the i^{th} reaction is said to be unimportant and removed from the skeletal mechanism. Otherwise, the i^{th} reaction is kept in the skeletal mechanism.

Bild 18 shows the reduction procedure as a flow diagram.

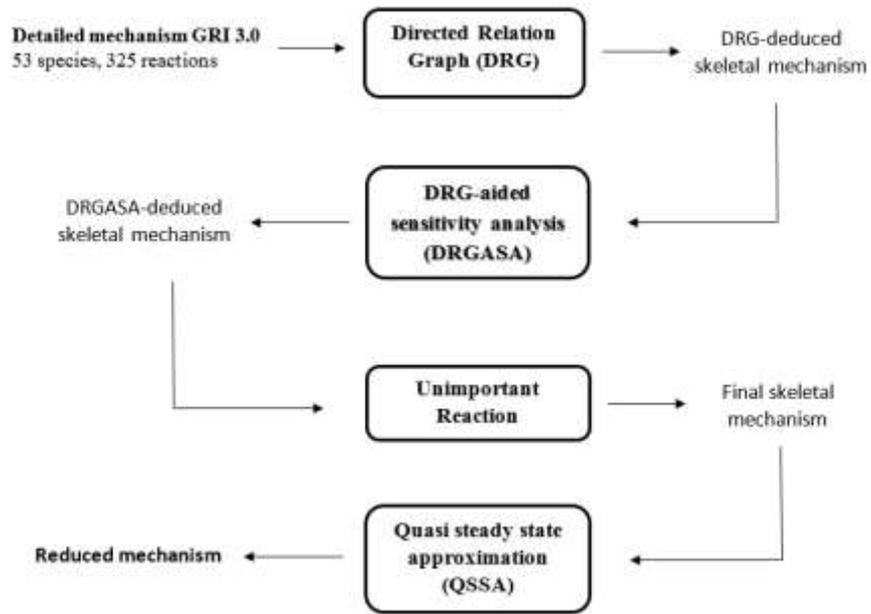


Bild 18: Flow chart of the reduction procedure

The skeletal mechanism with 21 species and 39 reaction equations is given in the following table:

Nr.	Reaction	A mole, cm ³ , sec	n	E Cal/mole
18	H+CH3(+M) = CH4(+M) H2 /2.000000E+000/ H2O /6.000000E+000/ CH4 /3.000000E+000/ CO /1.500000E+000/ CO2 /2.000000E+000 C2H6 /3.000000E+000/ AR /7.000000E-001/ LOW TROE /7.830000E-001 7.400000E+001 2.941000E+003 6.964000E+003/	1.3900E+016 2.6200E+033	-0.5340 - 4.7600	5.3600E+002 2.4400E+003
19	H+CH4 = CH3+H2	6.6000E+008	1.6200	1.0840E+004
20	H+C2H4(+M) = C2H5(+M) H2 /2.000000E+000/ H2O /6.000000E+000/ CH4 /2.000000E+000/ CO /1.500000E+000/ CO2 /2.000000E+000/ C2H6 /3.000000E+000/ AR /7.000000E-001/ LOW TROE /9.753000E-001 2.100000E+002 9.840000E+002 4.374000E+003/	5.4000E+011 6.0000E+041	0.4540 - 7.6200	1.8200E+003 6.9700E+003
21	H+C2H6 = C2H5+H2	1.1500E+008	1.9000	7.5300E+003
22	H+CH2CO = CH3+CO	1.1300E+013	0.0000	3.4280E+003
23	H2+CO(+M) = CH2O(+M) H2 /2.000000E+000/ H2O /6.000000E+000/ CH4 /2.000000E+000/ CO /1.500000E+000/ CO2 /2.000000E+000/ C2H6 /3.000000E+000 AR /7.000000E-001/ LOW TROE /9.320000E-001 1.970000E+002 1.540000E+003 1.030000E+004/	4.3000E+007 5.0700E+027	1.5000 -3.4200	7.9600E+004 8.4350E+004
24	OH+H2 = H+H2O	2.1600E+008	1.5100	3.4300E+003
25	2OH = O+H2O	3.5700E+004	2.4000	- 2.110E+003
26	OH+HO2 = O2+H2O	1.4500E+013	0.0000	- 5.00E+002
27	OH+CH2 = H+CH2O	2.0000E+013	0.0000	0.0000E+000
28	OH+CH3 = CH2(S)+H2O	6.4400E+017	- 1.3400	1.4170E+003

29	$\text{OH} + \text{CH}_4 = \text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}$	1.0000E+008	1.6000	3.1200E+003
30	$\text{OH} + \text{CO} = \text{H} + \text{CO}_2$	4.7600E+007	1.2280	7.0000E+001
31	$\text{OH} + \text{C}_2\text{H}_2 = \text{H} + \text{CH}_2\text{CO}$	2.1800E-004	4.5000	-1.000E+003
32	$\text{OH} + \text{C}_2\text{H}_6 = \text{C}_2\text{H}_5 + \text{H}_2\text{O}$	3.5400E+006	2.1200	8.7000E+002
33	$\text{HO}_2 + \text{CO} = \text{OH} + \text{CO}_2$	1.5000E+014	0.0000	2.3600E+004

Based on this skeletal mechanism, a reduced mechanism with 17 species and 12 reactions was developed.

6.1.3. Performance of the skeletal mechanism

Comparisons of species mass fraction and temperature profiles among the detailed and derived skeletal mechanisms shown in **Bild 19 - 21** illustrate the good predictions capacities of the final skeletal mechanism generated.

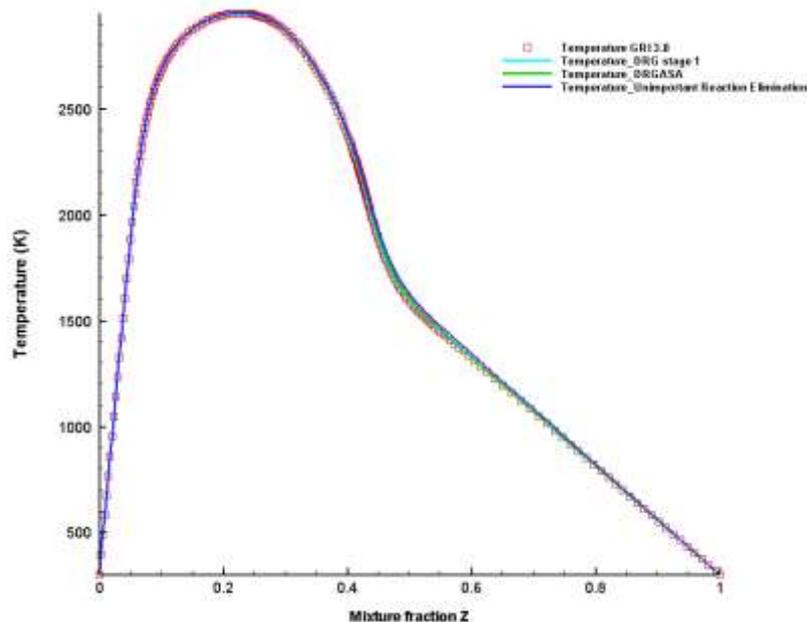


Bild 19: Profiles of temperature using GRI 3.0 mechanism and skeletal mechanisms for a diffusion flame with conditions $p = 1 \text{ bar}$, $Y_{\text{O}_2} = 1.0$, $Y_{\text{CH}_4} = 1.0$, $T_F = T_{\text{Ox}} = 300 \text{ K}$ and a strain rate $a = 0.2 \text{ s}^{-1}$ in an opposing flows test bed configuration

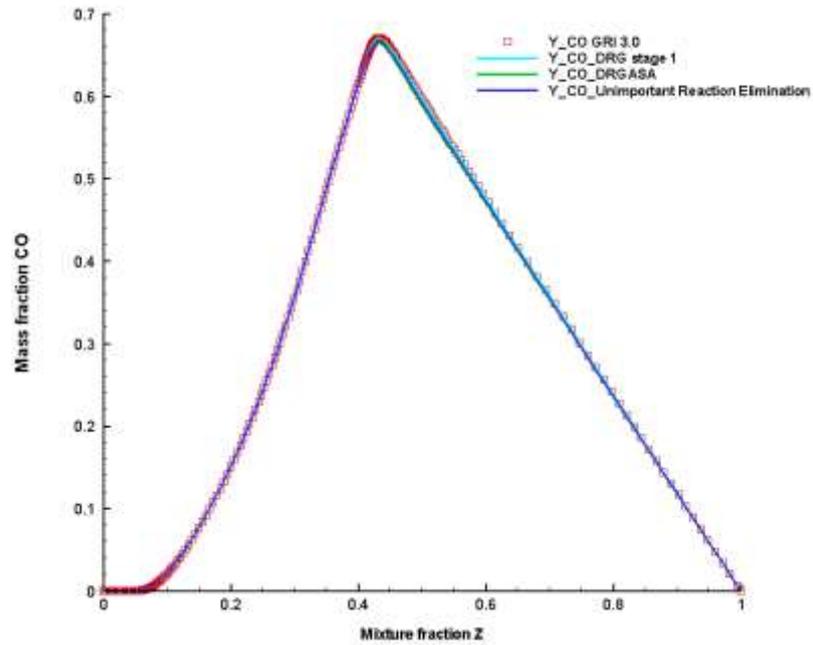


Bild 20: Comparison of predictions of CO mass fraction profiles between the detailed mechanism (GRI 3.0) and skeletal mechanisms for a diffusion flame with conditions $p = 1$ bar, $Y_{O_2} = 1.0$, $Y_{CH_4} = 1.0$, $T_F = T_{Ox} = 300$ K and a strain rate $a = 0.2$ s⁻¹ in an opposing

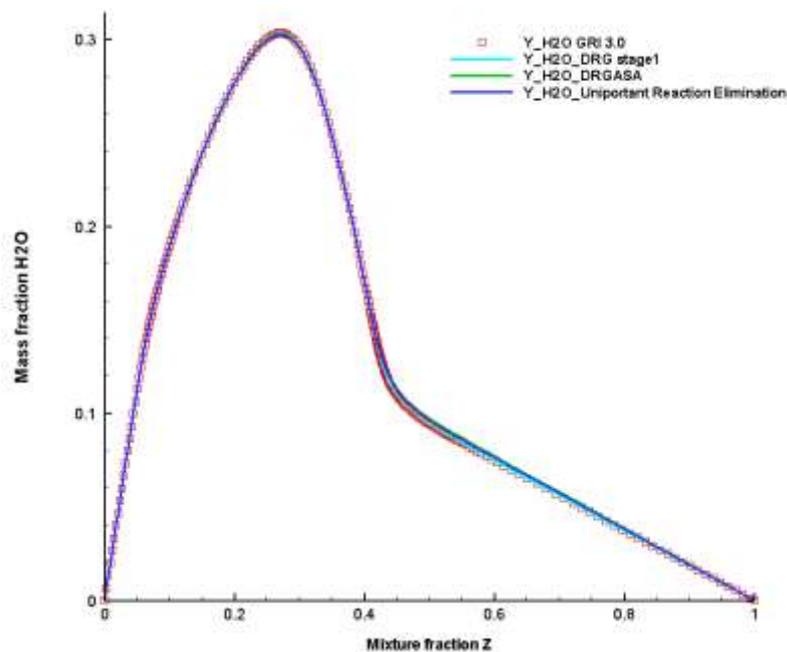


Bild 21: Comparison of predictions of H₂O mass fraction profiles between the detailed mechanism (GRI 3.0) and skeletal mechanisms for a diffusion flame with conditions $p = 1$ bar, $Y_{O_2} = 1.0$, $Y_{CH_4} = 1.0$, $T_F = T_{Ox} = 300$ K and a strain rate $a = 0.2$ s⁻¹ in an opposing

6.1.3.4. Results of the reduced mechanism

The transition from the skeletal mechanism to the global reduced one is achieved by applying the quasi-steady state approximation to a selected group of intermediates species. The choice of reactions which constitute the final global mechanism can be guided by the reaction pathway analysis, viz., the process of identification of sequence of connected elementary reactions within a combustion process or within an overall chemical reaction process.

Pathway analyses can help in the selection of reactions which will constitute the final global mechanism. The accuracy of a global mechanism is assessed by comparing simulation results of the starting detailed mechanism with those of the derived global mechanism. Reaction pathways graphs for C, H and O atoms are shown in **Bild 22 - 24**.

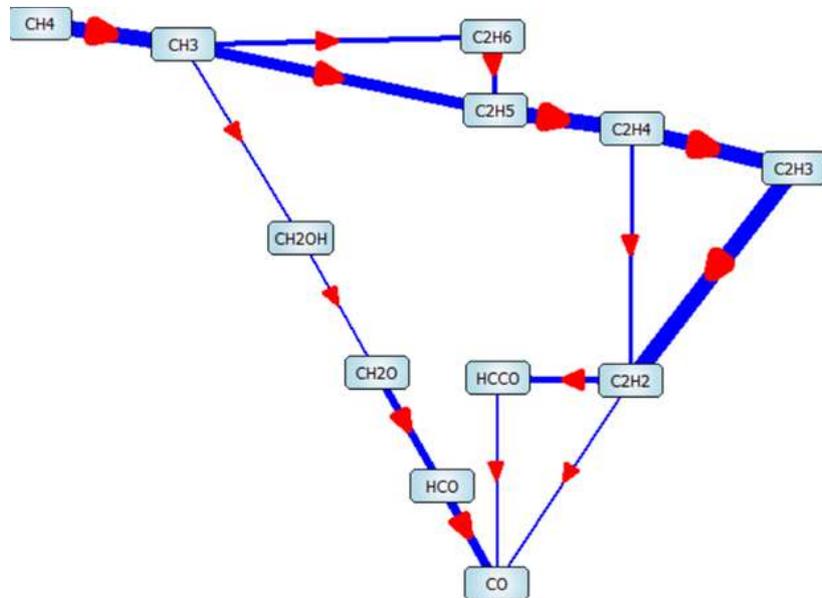


Bild 22: Reaction pathway analysis for C atoms in the case of a diffusion flame with conditions $p = 1 \text{ bar}$, $Y_{O_2} = 1.0$, $Y_{CH_4} = 1.0$, $T_F = T_{Ox} = 300 \text{ K}$

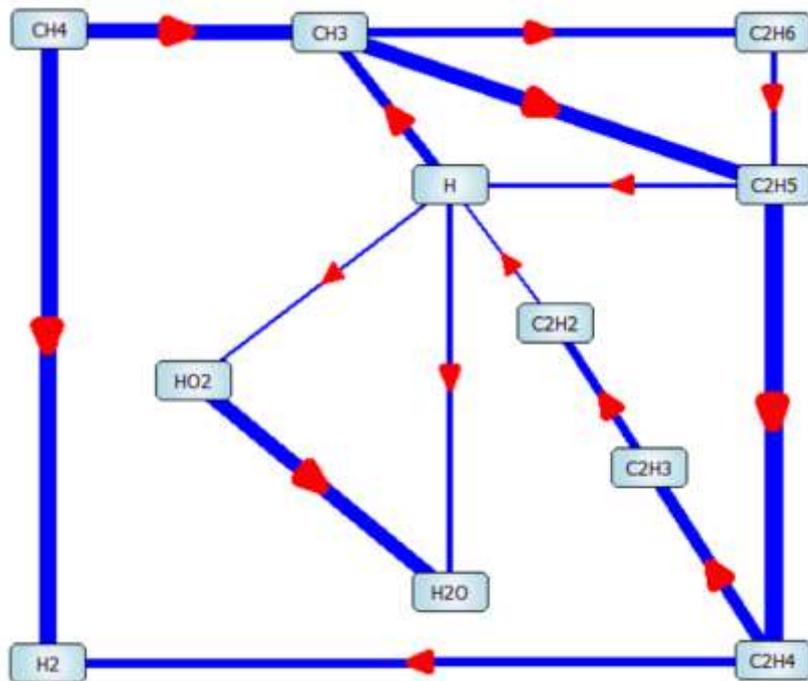


Bild 23: Reaction pathway analysis for H atoms in the case of a diffusion flame with conditions $p = 1 \text{ bar}$, $Y_{O_2} = 1.0$, $Y_{CH_4} = 1.0$, $T_F = T_{Ox} = 300 \text{ K}$

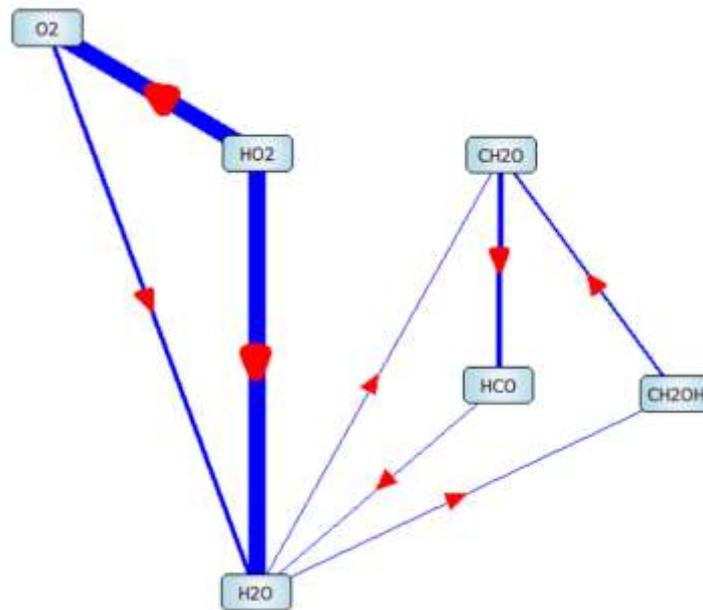
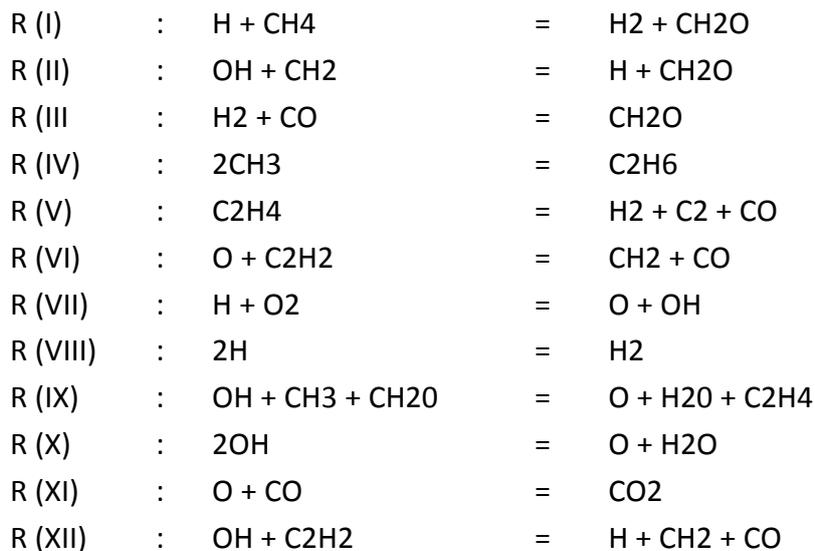


Bild 24: Reaction pathway analysis for O atoms in the case of a diffusion flame with conditions $p = 1 \text{ bar}$, $Y_{O_2} = 1.0$, $Y_{CH_4} = 1.0$, $T_F = T_{Ox} = 300 \text{ K}$

6.1.3.5. 12-step reduced mechanism with 17 species



The final global reaction rates are as follows:

$$w \text{ (I)} = 3 \omega(3) + \omega(4) + 4 \omega(8) - \omega(10) - \omega(11) - \omega(12) - \omega(14) + \omega(15) \\ + 2 \omega(16) + \omega(17) - 2 \omega(18) + \omega(19) - \omega(20) + \omega(21) - \omega(22) \\ + \omega(24) + 2 \omega(29) - 6 \omega(30) + 4 \omega(32) - 6 \omega(33) + 6 \omega(36)$$

$$w \text{ (II)} = -\omega(8) - \omega(16) + \omega(27) + 3 \omega(30) - \omega(32) + 3 \omega(33) + \omega(34) \\ - 2 \omega(36)$$

$$w \text{ (III)} = -\omega(8) - \omega(16) + \omega(23) + 3 \omega(30) - \omega(32) + 3 \omega(33) - 2 \omega(36)$$

$$w(\text{IV}) = 3 \text{ om}(3) + 3 \text{ om}(8) - \text{ om}(10) - \text{ om}(11) - \text{ om}(12) - \text{ om}(14) + \text{ om}(15) + 2 \text{ m}(16) + \text{ om}(17) - \text{ om}(18) - \text{ om}(20) - \text{ om}(22) + \text{ om}(24) + \text{ om}(29) - 6 \text{ om}(30) + 3 \text{ om}(32) - 6 \text{ om}(33) + 6 \text{ om}(36) + \text{ om}(37)$$

$$w(\text{V}) = - \text{ om}(8) - \text{ om}(16) + 3 \text{ om}(30) - \text{ om}(32) + 3 \text{ om}(33) - 2 \text{ om}(36) + \text{ om}(38)$$

$$w(\text{VI}) = \text{ om}(1) + \text{ om}(3) + \text{ om}(4) + \text{ om}(6) + 2 \text{ om}(8) + \text{ om}(10) + \text{ om}(11) + \text{ om}(12) + \text{ om}(15) - \text{ om}(17) + \text{ om}(20) + \text{ om}(21) + \text{ om}(24) + \text{ om}(29) - \text{ om}(30) + 2 \text{ om}(32) - \text{ om}(33) + 2 \text{ om}(36)$$

$$w(\text{VII}) = \text{ om}(13) + \text{ om}(16) + \text{ om}(33)$$

$$w(\text{VIII}) = - \text{ om}(1) - 3 \text{ om}(3) - \text{ om}(4) - 4 \text{ om}(8) + \text{ om}(10) + \text{ om}(11) + \text{ om}(12) + 2 \text{ om}(14) - \text{ om}(15) - 2 \text{ om}(16) + 2 \text{ om}(18) + \text{ om}(20) + \text{ om}(22) - 2 \text{ om}(24) - 2 \text{ om}(29) + 6 \text{ om}(30) - 4 \text{ om}(32) + 6 \text{ om}(33) - 6 \text{ om}(36)$$

$$w(\text{IX}) = \text{ om}(2) - 2 \text{ om}(3) - 3 \text{ om}(8) + \text{ om}(14) - \text{ om}(15) - \text{ om}(16) + \text{ om}(18) - \text{ om}(24) + \text{ om}(26) - \text{ om}(29) + 6 \text{ om}(30) - 3 \text{ om}(32) + 7 \text{ om}(33) + \text{ om}(34) - 5 \text{ om}(36)$$

$$w(\text{X}) = - \text{ om}(2) + 2 \text{ om}(3) + 3 \text{ om}(8) - \text{ om}(14) + 2 \text{ om}(15) + 2 \text{ om}(16) - \text{ om}(18) + 2 \text{ om}(24) + \text{ om}(25) + 2 \text{ om}(29) - 6 \text{ om}(30) + 4 \text{ om}(32) - 7 \text{ om}(33) - \text{ om}(34) + 6 \text{ om}(36)$$

$$w(\text{XI}) = \text{ om}(5) + \text{ om}(9) + \text{ om}(30) + \text{ om}(33) - \text{ om}(36)$$

$$w(\text{XII}) = - \text{ om}(1) - \text{ om}(4) - 3 \text{ om}(8) - \text{ om}(16) + 4 \text{ om}(30) + \text{ om}(31) - 3 \text{ om}(32) + 4 \text{ om}(33) - 4 \text{ om}(36)$$

In these expressions, $\text{om}(i)$ denotes the net rate of progress of the i -th reaction of the skeletal mechanism.

Global reaction rates are crucial in the implementation of a reduced mechanism into a Computational Fluid Dynamics (CFD) code. Specifically, they are used in the so-called CHEMKIN CKWYP-like subroutine [89] to calculate species molar production rates for the reduced mechanism. Once this is done, the computation proceeds in the same manner as with the detailed chemistry. The next step in the research is to derive alternative rate expressions. Specifically, it is proposed to express the global rates $w(\text{I})$ to $w(\text{XII})$ by empirical expressions, for each global reaction, in terms of one activation energy, one pre-exponential rate factor, one pre-exponential temperature dependence, global reaction orders and global third-body

efficiencies, i.e., by CHEMKIN-like or COSILAB-like [90] rate expressions such that no user function is required for CFD computations.

6.2. Entwicklung von nicht-adiabaten Flamelet-Modellen für die Oxy-Fuel-Verbrennung

Flamelet models describe a turbulent diffusion flame as an ensemble of one dimensional thin layers embedded within the turbulent flow. The flamelet formulation assumes that chemistry is fast compared to transport processes. This formulation is attractive because it enables the incorporation of detailed chemistry for numerical simulation of turbulent flames at relatively reduced computational cost. The flamelet governing equations for species mass fractions Y_k and temperature (as a measure of energy) formulated in mixture fraction space are given by [91]:

$$\frac{\partial Y_k}{\partial t} = \frac{\chi}{2 Le_k} \frac{\partial^2 Y_k}{\partial Z^2} + \frac{\omega_k}{\rho}, \quad k = 1, KK$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\chi}{2} \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} - \frac{\sum_k^{KK} h_k \omega_k}{\rho c_p} - \frac{\nabla \cdot q_{rad,lam}}{\rho c_p}$$

KK is the number of species in the system and χ is the scalar dissipation rate. Both constant and mixture fraction dependent expressions of the scalar dissipation rate have been used in this study.

The last term on the right hand side of the energy equation represents a radiative heat loss term which is modeled according to

$$\nabla \cdot q_{rad} = 2\sigma k_p(p, X_{H_2O}, X_{CO_2})(2T^4 - T_F^4 - T_{OX}^4)$$

k_p represents the Plank-mean absorption coefficient which is taken as a function of pressure and mole fraction of H_2O and CO_2 .

A new non-adiabatic flamelet model, which introduces a statistical parameter ε , $0 \leq \varepsilon \leq 1$, for modelling of radiative heat loss was developed. The radiative heat loss term of the energy equation is modeled as follows:

$$\nabla \cdot q_{rad,lam}(\varepsilon) = \varepsilon \nabla \cdot q_{rad}$$

The exact definition of the parameter ε depends on the chemical source-term closure selected for a specific turbulent non-premixed combustion problem. The case $\varepsilon = 0$ corresponds to the adiabatic flamelet model.

Two flamelet libraries were generated using the new flamelet model with GRI 3.0 mechanism. The first flamelet library uses the same diffusivity assumption for all species while the

second one considers differential diffusion effects. The two libraries have been used by the Duisburg group in the simulation of turbulent diffusion flames. **Bild 25** and **26** show temperature profiles obtained with the new non-adiabatic flamelet model for different values of the statistical parameter ε . Temperature profiles decrease drastically from the case $\varepsilon = 0$ onwards. In **Bild 27**, CO species mass fraction profiles plunge significantly as ε parameter values increase.

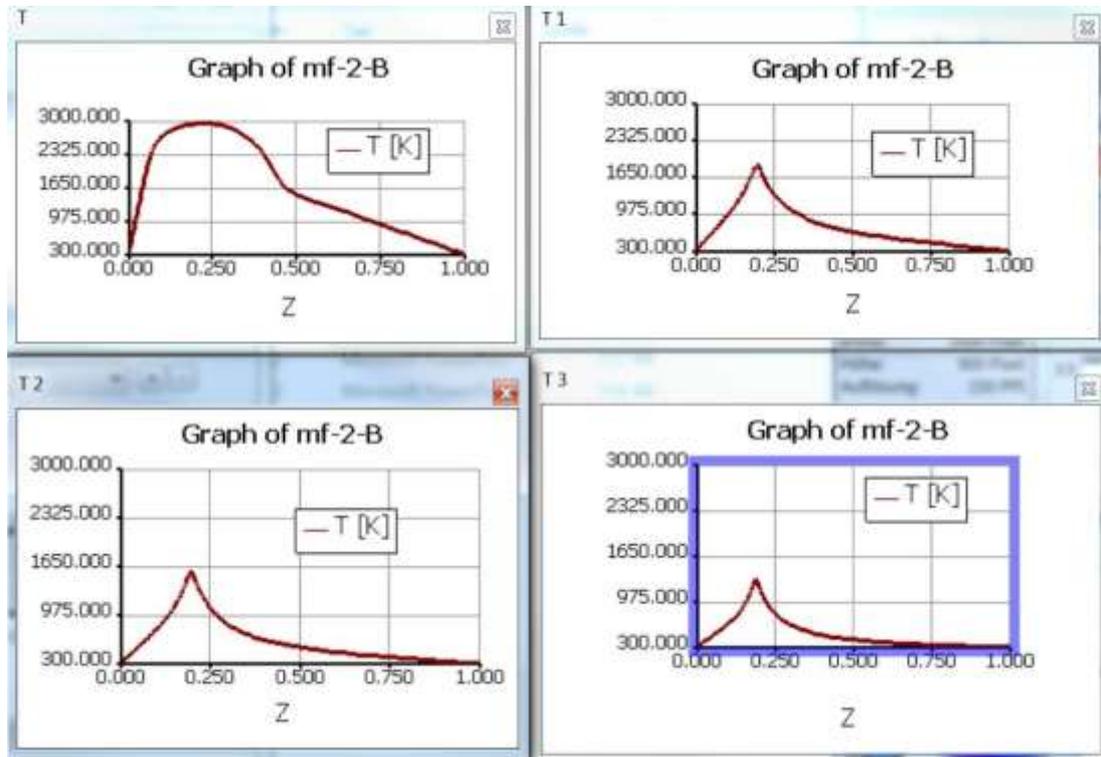


Bild 25: Temperature profiles obtained with the new non-adiabatic flamelet model for different values of the statistical parameter ε with a constant scalar dissipation rate $\chi = 0.01 / s$

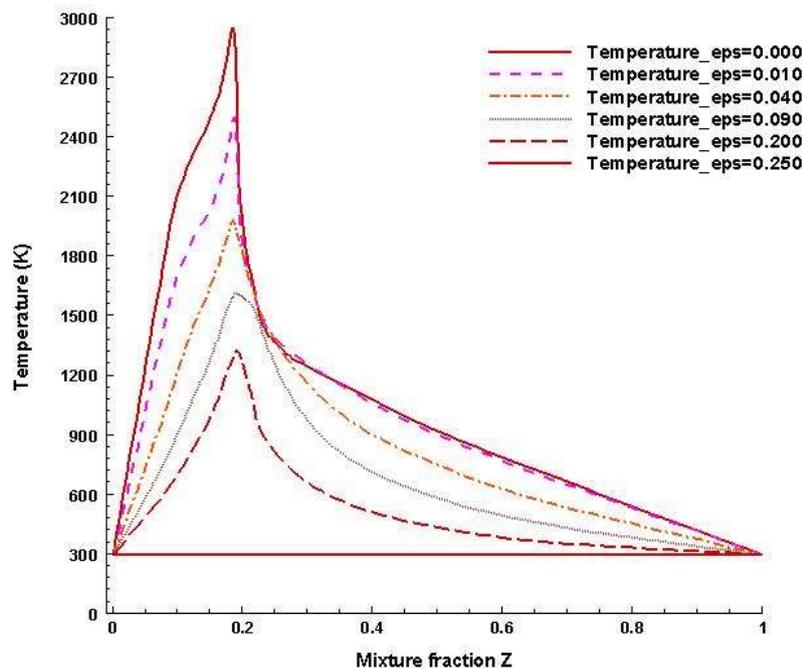


Bild 26: Temperature profiles calculated with the new non-adiabatic flamelet model for different value of the statistical parameter ε with a variable scalar dissipation rate.

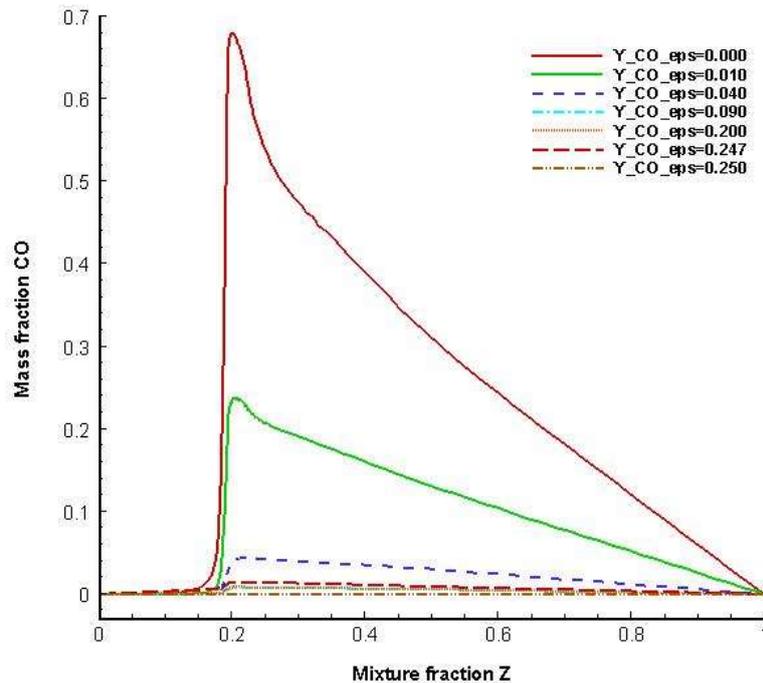


Bild 27: CO species mass fraction profiles obtained with the new non-adiabatic flamelet model for different value of the statistical parameter ε with a variable scalar dissipation rate

6.2.1. Wärmeverluste in der Flamelet-Modellierung

Die beschriebenen Entwicklungsarbeiten für nicht-adiabate Flamelet-Modelle, die an der Ruhr-Universität Bochum durchgeführt wurden, erfolgten in enger Abstimmung mit den Arbeiten an der Universität Duisburg-Essen. Dort wurden parallel auch verschiedene, bereits verfügbare Flamelet-Implementierungen für den „open source“-CFD-Code OpenFOAM auf ihre Eignung für die Beschreibung von Oxy-Fuel-Verbrennungsvorgängen untersucht.

Bei der Betrachtung der vorab von der Universität Duisburg-Essen präsentierten Berechnungen zeigten sowohl die Flamelet-Implementierung des Politecnico di Milano, als auch die Flamelet-Implementierung der Uni-BW München markante Abweichungen im Vergleich zu den Messungen. Besonders das vom Politecnico di Milano implementierte Flameletmodell wies starke numerische Instabilitäten auf, sowohl bei der Berechnung von Flamelets mit höheren Wärmeverlusten, als auch bei deren Anwendung in der CFD-Simulation. Durch Schwächen im Modell lagen die maximal zu erreichenden Verluste hier bei ca. einem Drittel der Enthalpieverluste, die für die Berechnung einer Sauerstoffflamme von Nöten gewesen wären. Ferner zeigte sich bei der genaueren Betrachtung der Flamelet-Datenbanken, dass diese im nicht-adiabaten Fall generell fehlerbehaftet berechnet werden, wobei der Fehler mit steigendem Wärmeverlust zunimmt (**Bilder 28** und **29**). Der Grund für dieses Verhalten liegt in dem Ansatz dieses einfachen Modells, der einen konstanten Wärmeverlust über das gesamte Flamelet vorgibt und somit zu Fehlern in den schwach reagierenden Zonen führt. Dieses Modell eignet sich bestenfalls für Verbrennungen mit geringen Wärmeverlusten, nicht aber für die Modellierung einer Oxy-Fuel-Flamme. Die Idee, auf das bereits bestehende Wärme-

verlustmodell des Flameletcodes des Politecnico di Milano zurückgreifen zu können, musste dementsprechend verworfen werden.

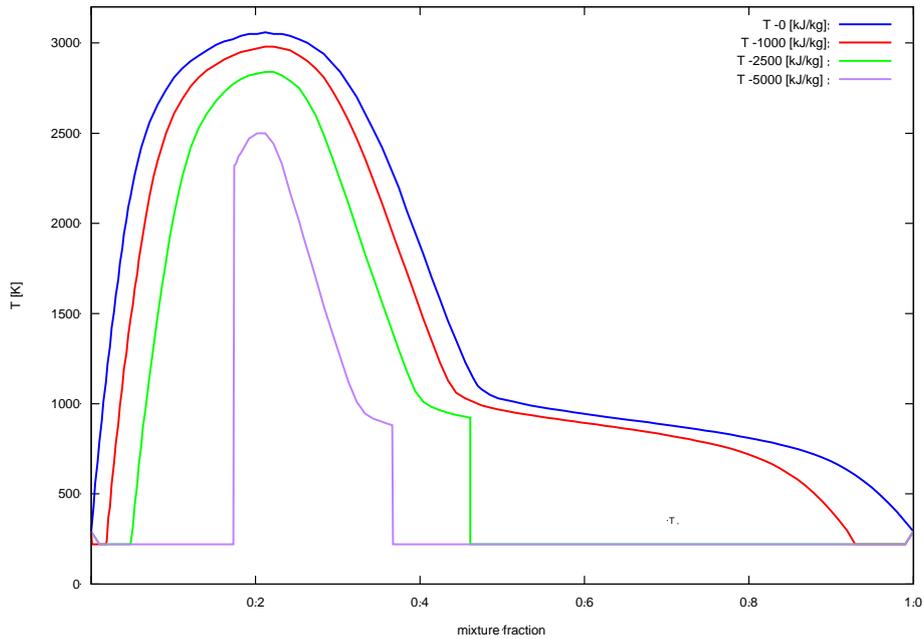


Bild 28: Fehlerhaft berechnete Temperatur des Flamelet-Modells des Politecnico di Milano aufgetragen über den Mischungsbruch

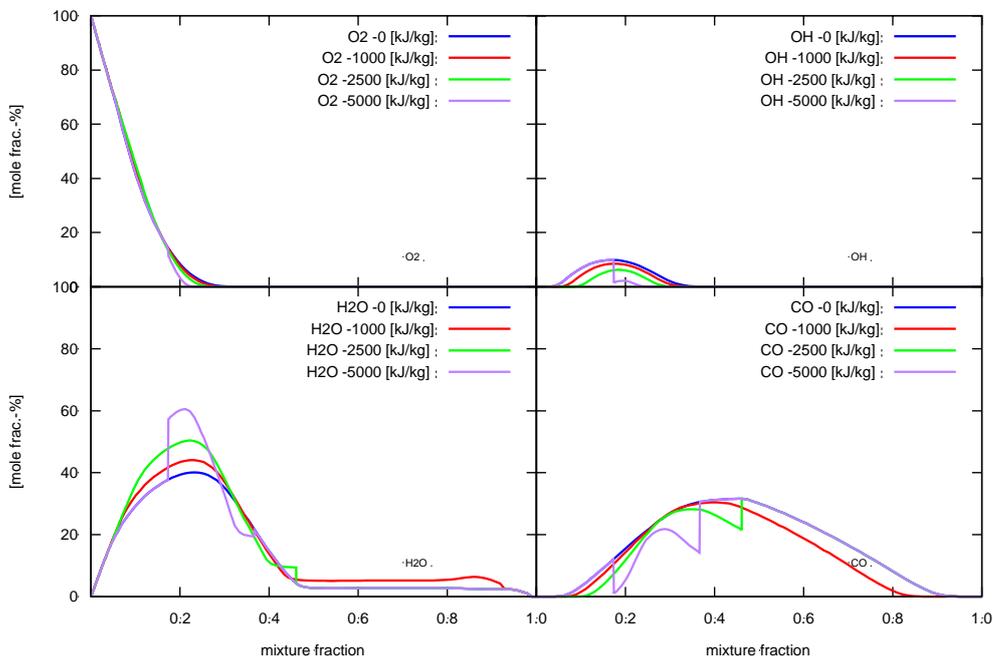


Bild 29: Fehlerhaft berechnete Spezieskonzentrationen des Flameletmodells des Politecnico di Milano aufgetragen über den Mischungsbruch

Um die Basis der beiden Flamelet-Implementierungen (Politecnico di Milano und Uni-BW) ohne Wärmeverluste untersuchen zu können, wurde ein Testfall gewählt, welcher bereits oft erfolgreich mit adiabaten, reaktiven CFD-Codes validiert wurde. Der Testfall „Sandia Flame

D“ [92], [93] wurde von R. Barlow und J. Frank in den Sandia National Laboratories und von Ch. Schneider, A. Dreizler und J. Janicka an der Technischen Universität Darmstadt vermessen. Durch den geringen Messfehler, die feine Auflösung der Messpunkte und der erstmaligen Verfügbarkeit instantaner Punktmessungen hat sich dieser Testfall für die Überprüfung von Verbrennungsmodellen in der CFD-Simulation etabliert. Bei der „Flame D“ besteht der Brenner aus einer zentralen Düse mit einem Durchmesser von 7,2 mm, die von einem Piloten mit einem Durchmesser von 18,2 mm umringt wird. Durch die Positionierung des Brenners im Windkanal wurde eine Rezirkulation verhindert und eine gut modellierbare Umgebung geschaffen. Für die RANS Simulation dieses Falls wurde ein lokal verfeinertes, achsensymmetrisches 2D-Hexaedergitter erstellt. Zur Modellierung der Turbulenz wurde das k- ϵ Modell verwendet.

6.2.2. Ergebnisse des adiabaten Falls „Sandia Flame D“

Der Vergleich der Ergebnisse beider Flamelet-Codes weist bei gleichen Randbedingungen starke Unterschiede auf, die zu Gunsten der Flamelet-Implementierung der Uni-BW ausfallen (vgl. **Bilder 30** und **31**). Anhand der Verteilung des Mischungsbruchs – einer reinen Erhaltungsgröße – und der Temperatur lässt sich deutlich zeigen, dass die Implementierung des Politecnico di Milano Mängel aufweist. Nur im Brennernahbereich ist die Verteilung des Mischungsbruchs beider Codes ähnlich. Die Temperatur der Uni-BW Implementierung ist jedoch durchwegs genauer, wobei auch hier teils größere Abweichungen zur Messung zu beobachten sind. Es sei hier aber erwähnt, dass dieser Code zur Berechnung von Realgasen entwickelt wurde und daher noch weitere Anpassungen von Nöten waren, die zum Zeitpunkt dieses Vergleichs noch nicht von dem Projektpartner (Universität Duisburg-Essen) vorgenommen wurden. Trotzdem wurde durch die vielversprechendere und deutlich leichter zugängliche Basis die Flamelet-Implementierung der Uni-BW für die weitere Entwicklung herangezogen. Auf weitere Untersuchungen der Implementierung des Politecnico di Milano wurde verzichtet.

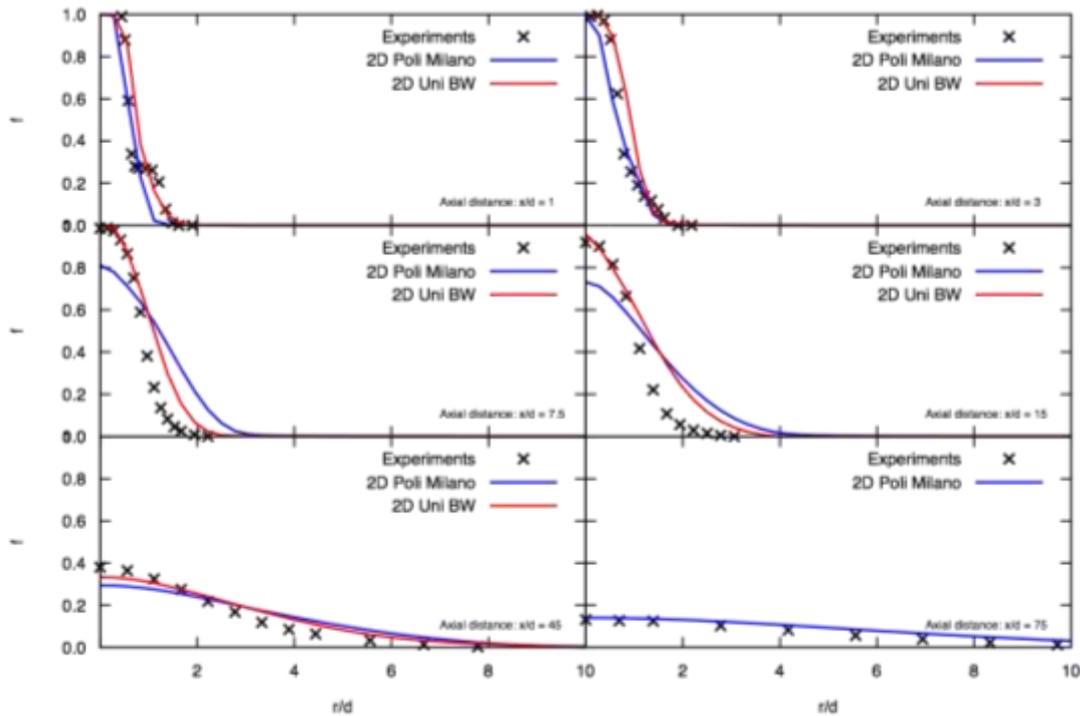


Bild 30: Radialprofile des Mischungsbruchs an unterschiedlichen axialen Positionen im Testfall Sandia Flame D

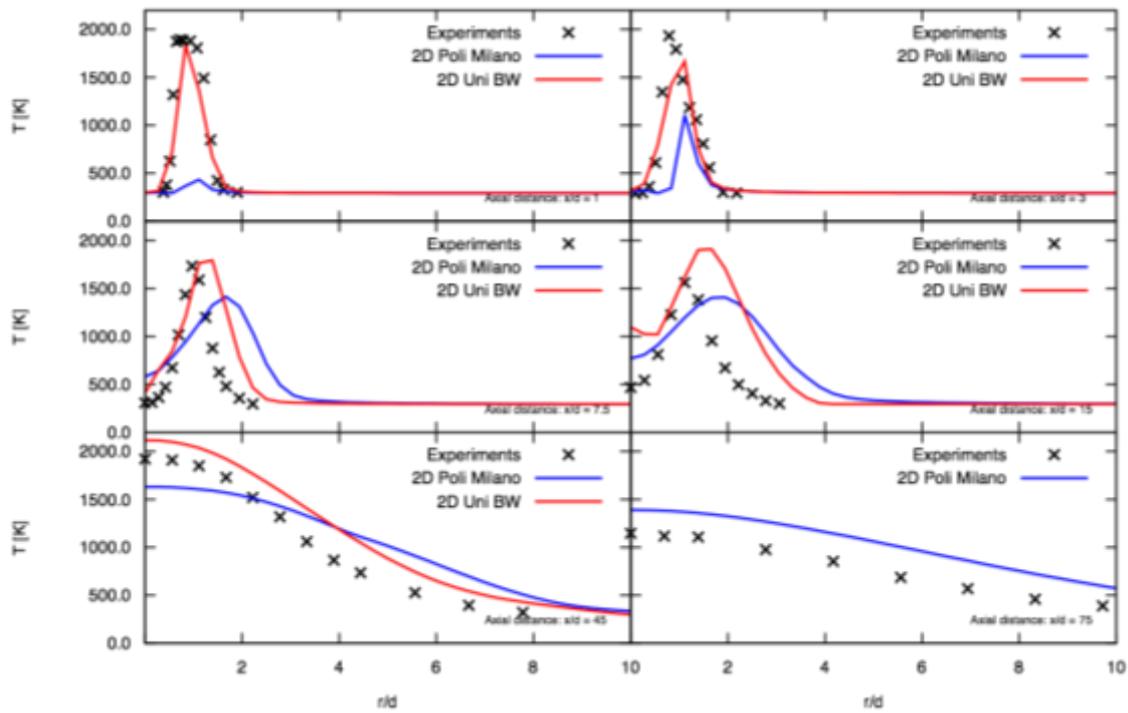


Bild 31: Radialprofile der Temperatur an unterschiedlichen axialen Positionen im Testfall Sandia Flame D.

In dem von der Uni-BW bereitgestellten Löser wurden die thermodynamischen Größen ursprünglich zur Laufzeit berechnet, was den Code sehr ineffizient bei der Betrachtung von Idealgasen machte. Auch die Modellierung der Chemie-Turbulenz-Interaktion im Preprocessing, die β -Integration, musste für diesen speziellen Fall erweitert werden, da beispielsweise die Dichte – als nicht Favre-gemittelte Größe – eine spezielle Behandlung benötigt. Die Anpassungen wurden von der Arbeitsgruppe von Prof. Kempf (Duisburg- Essen) vorgenommen

und die Effizienz des Codes gesteigert, indem die thermodynamischen Größen nun zur Laufzeit aus den Flamelet-Tabellen eingelesen werden. Einige Änderungen waren allerdings nicht unproblematisch, so führte etwa das Abrufen der Dichte aus der Flamelet-Tabelle zur Laufzeit der CFD-Berechnung zu Inkonsistenzen in der Massenerhaltung und schließlich zum Absturz der Rechnung. Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, dass der Löser die Dichte der Druckänderung anpasst. Eine Überschreibung der korrigierten Dichte mit der aus der Flamelet-Tabelle führte dementsprechend zu einem abrupten Sprung auf Seiten der Dichte und somit zu einer Verletzung der Massenbilanz. Dieser Fehler wurde beseitigt, indem eine durch den Druck normierte Dichte tabelliert wurde. Zur Laufzeit der CFD-Berechnung wird diese Dichte nun mit dem Druck aus der CFD-Berechnung skaliert und berücksichtigt somit die Druckänderung. Durch die beschriebenen Änderungen ist der Löser nun nicht nur robuster, sondern auch genauer hinsichtlich der Validierung mit dem Testfall „Sandia Flame D“, wie in **Bild 32** und **33** gezeigt.

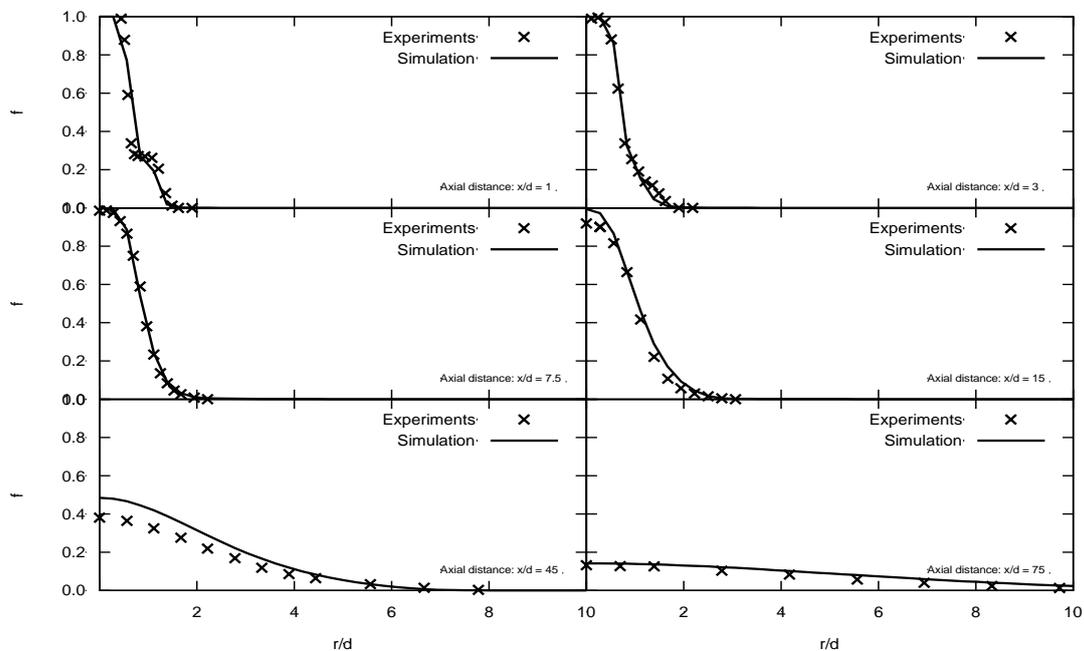


Bild 32: Radialprofile des Mischungsbruchs an unterschiedlichen axialen Positionen im Testfall Sandia Flame D mit dem angepassten Flamelet-Code.

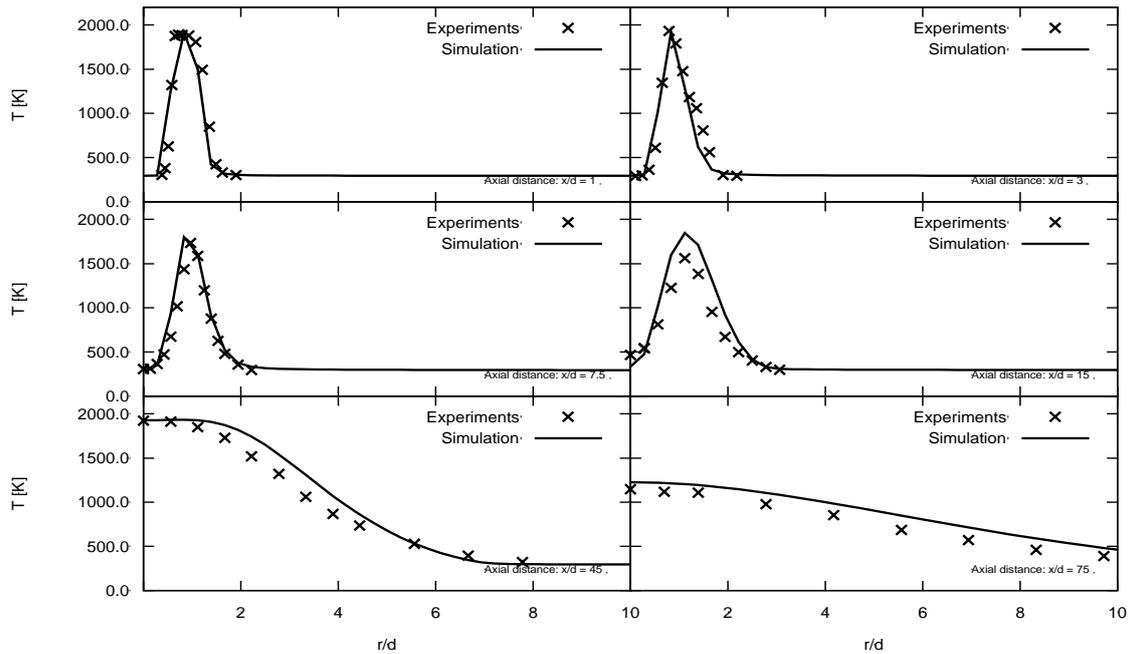


Bild 33: Radialprofile der Temperatur an unterschiedlichen axialen Positionen im Testfall Sandia Flame D mit dem angepassten Flamelet-Code

6.2.3. Testfälle OXYFLAM A und B der International Flame Research Foundation (IFRF)

Im Anschluss an die Basistests und -anpassungen soll die Implementierung anhand einer Oxy-Fuel Flamme validiert werden. Wie im zweiten Arbeitspaket festgelegt, wurde ein relativ einfacher Testfall für die Validierung des Flamelet Löser gewählt. Bei diesem Fall handelt es sich um die Flamme B aus dem OXYFLAM Projekt der International Flame Research Foundation (IFRF) [16]. Die thermische Leistung entspricht 0,78 MW, wobei die Dimensionen der Brennkammer mit dem Hochtemperatur-Brennerprüfstand des GWI vergleichbar sind. Die genauen Spezifikationen sind **Bild 34** zu entnehmen.

Der Vergleich der Simulationsergebnisse des adiabaten Codes mit den Messdaten zeigte erneut die Notwendigkeit, die Strahlungsverluste während der Simulation zu berücksichtigen. Zu diesem Zweck wurden der Transport des Energieverlustes und ein Modell für Strahlungsverluste in den Löser implementiert. Die Abstrahlung des Gases wird hier auf Basis der Temperaturdifferenz zur Umgebung und der Planck-Absorptionskoeffizienten berechnet [94]. Diese Planck-Absorptionskoeffizienten werden anhand temperaturabhängiger Polynome vierter bis fünfter Ordnung berechnet, die jedoch nicht für die extremen Bedingungen einer Oxy-Fuel-Verbrennung bestimmt wurden. Das Modell musste deshalb mit einer Fallunterscheidung erweitert werden, welche die Absorptionskoeffizienten ab einer Temperatur von 2500 K linear extrapoliert.

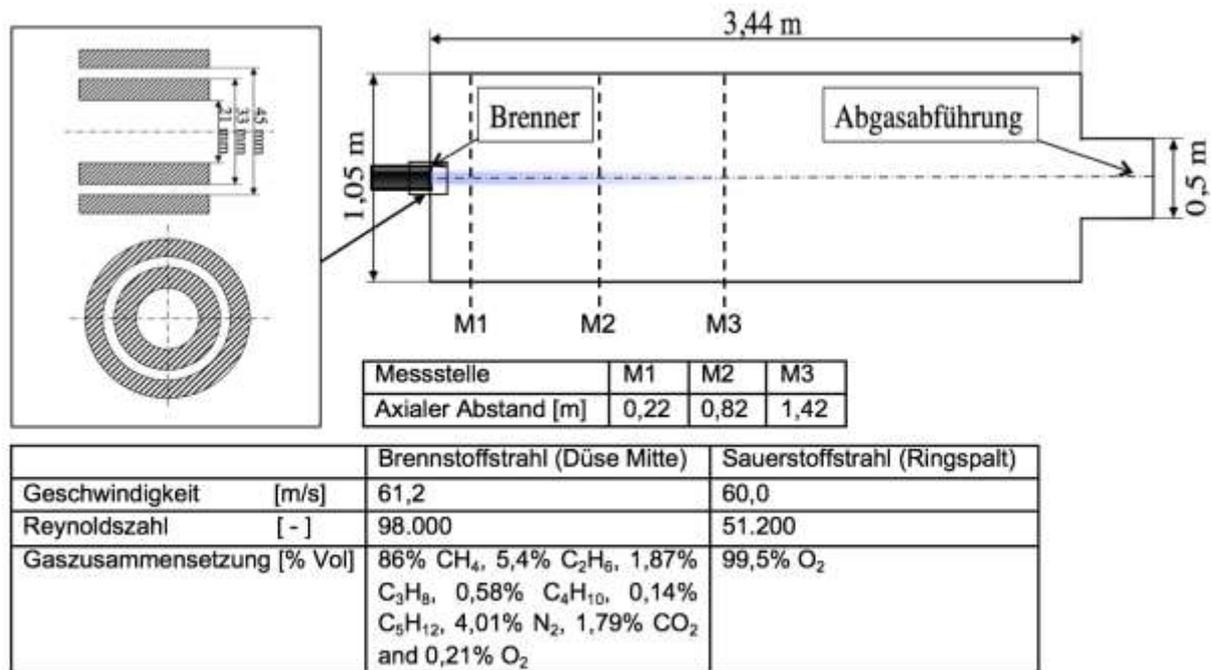


Bild 34: Randbedingungen der Messung OXYFLAM Brenner B

Weiterhin erwies sich die Tabellierung des Wärmeverlustes als problematisch. In Modellen für nicht-vorgemischte Flammen kann der Energieverlust über ein Flamelet konstant gehalten werden, da „brennerstabilisierte Flammen“ zur Beschreibung der Flamelets eingesetzt werden können. In diesem Fall ist die Kopplung des Wärmeverlustes mit dem jeweiligen Flamelet trivial und es kann direkt über den Wärmeverlust tabelliert werden. Flamelet-Tabellen für nicht vorgemischte Verbrennung werden mit Gegenstromflammen berechnet, bei denen der Energieverlust über die Flamme nicht konstant ist. Eine Tabellierung über den Wärmeverlust ist demnach kritisch. Um hier eine Lösung entwickeln zu können, wurde die Open Source Chemie Toolbox „Cantera“ so erweitert, dass verlustbehaftete Flamelet-Tabellen nach dem Ansatz von Proch [95] berechnet werden konnten. Anhand dieser Flamelet-Tabellen konnte ein Verfahren entwickelt und getestet werden, mit dem es möglich ist, verlustbehaftete Flamelet-Daten von Gegenstromflammen zu verwenden. Die Tabellen können dabei mit unterschiedlichen Methoden erstellt werden. Bei diesem Verfahren wird in einem Preprocessing-Schritt der maximal mögliche Energieverlust über den Mischungsbruch bestimmt und dazu verwendet, den Energieverlust der berechneten Flamelets im normierten Wertebereich von 0 bis 1 zu skalieren. Da Flamelets nicht bis zum maximalen Energieverlust berechnet werden können (meist bis zu einem skalierten Energieverlust von 0,7), werden im gleichen Schritt weitere Datenpunkte extrapoliert, mit denen dann der gesamte Zustandsraum gefüllt werden kann. Mit dieser Methode war es der Arbeitsgruppe an der Universität Duisburg-Essen möglich, schnell auf die Flamelet-Tabelle der Ruhr-Universität Bochum (aus der Gruppe von Prof. Rogg) umzusteigen und erste Ergebnisse für den Validierungsfall zu präsentieren. So ist eine deutliche Verbesserung der Ergebnisse im Vergleich zum adiabaten Fall erzielt worden (siehe **Bild 35**).

Bei der Berechnung handelt es sich um eine RANS-Simulation, für die ein zweidimensionales, achsensymmetrisches Hexaedergitter verwendet wurde. Das Gitter wurde in Brennernähe lokal verfeinert. Für die Turbulenzmodellierung wurde das k- ϵ Modell benutzt. Um eine schnellere Konvergenz zu ermöglichen und den Code effektiver zu gestalten, wurde ein lokales Zeitschritt-Verfahren in den Löser implementiert.

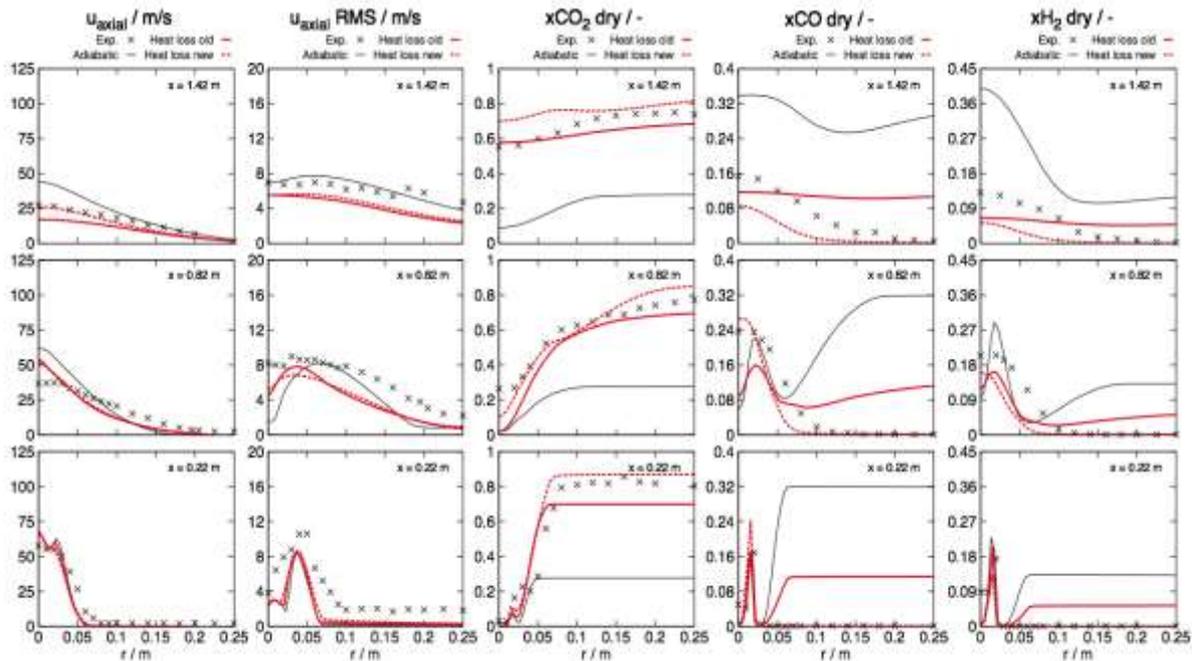


Bild 35: Radialprofile unterschiedlicher Größen mit und ohne Berücksichtigung des Wärmeverlustes

Trotz der guten Übereinstimmung mit den Messungen des obigen Testfalls, entschied der Projektpartner Universität Duisburg-Essen einen weiteren Testfall aus dem OXYFLAM Projekt zum Zwecke der Validierung zu simulieren. Bei diesem Testfall handelt es sich um die Brennerkonfiguration A (**Bild 36**), die im Vergleich zur Konfiguration B einen höheren Impuls aufweist. Ein weiterer, entscheidender Vorteil dieser Messung ist die Verfügbarkeit von Temperaturmessdaten, die im Falle der Konfiguration A mangels Kalibrierungsdaten gänzlich fehlten.

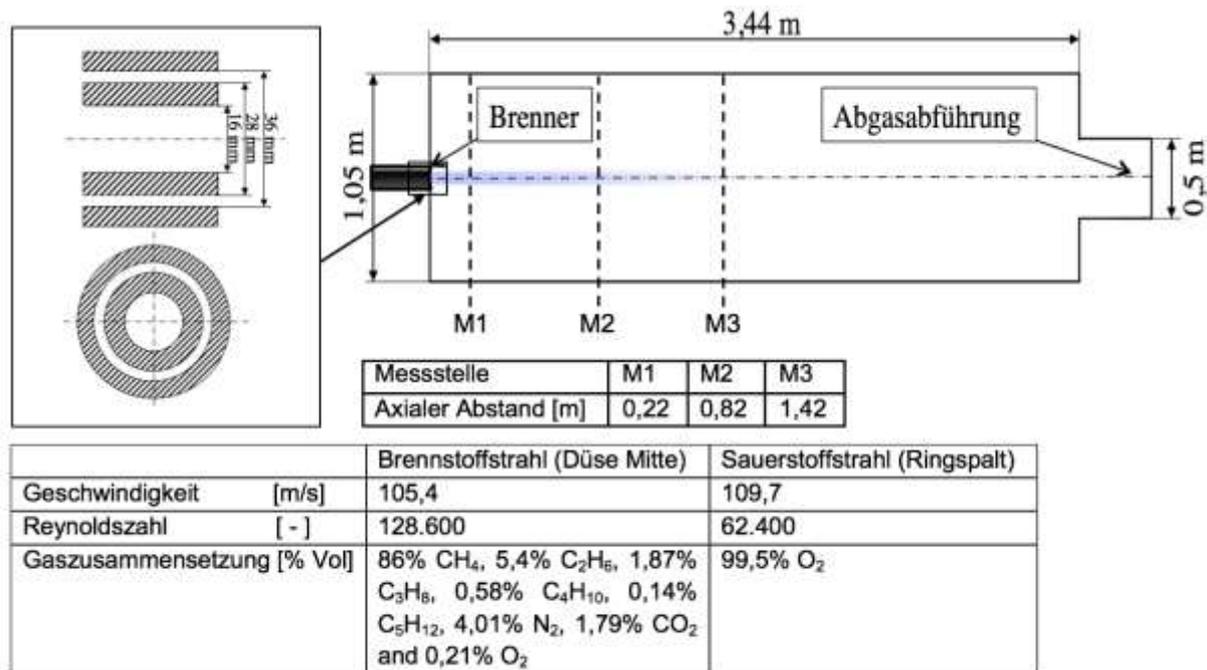


Bild 36: Randbedingungen der Messung OXYFLAM Brenner A

Auch in diesem Fall wurde die Achsensymmetrie des Brenners ausgenutzt, um die Rechendomäne auf ein achsensymmetrisches 2D-Problem zu verkleinern. Um eine Vergleichbarkeit mit der vorangegangenen Validierung zu gewährleisten, wurden alle numerischen Parameter und Modelle beibehalten und das Gitter mit einer vergleichbaren Qualität aufgelöst. Da davon ausgegangen werden muss, dass die Modellkonstanten des hier erweiterten Verbrennungsmodells ursprünglich nicht für eine derartige Flamme angepasst wurden, wurde für diesen Fall eine Parameterstudie zur Modellkonstante C_χ durchgeführt, die wesentlich die Chemie-Turbulenz-Interaktion beeinflusst. Die Ergebnisse der Simulation sind in **Bild 37** und **38** zu sehen.

Auch bei diesem Fall wird die Verbesserung der Simulationsergebnisse gegenüber dem adiabaten Fall deutlich. Werden die Ergebnisse des erweiterten Flameletmodells betrachtet, so kann erneut von einer guten Übereinstimmung mit den Messergebnissen gesprochen werden. Die erstmals vorhandenen Temperaturmessdaten zeigen jedoch, dass das für den Testfall angewendete OD-Strahlungsmodell den Wärmeverlust überschätzt. Ebenfalls ist bezüglich der Modellkonstante C_χ ein Trend zu erkennen: höhere Werte dieses Parameters verbessern die Ergebnisse für die Temperatur und die Spezies dieses Falls.

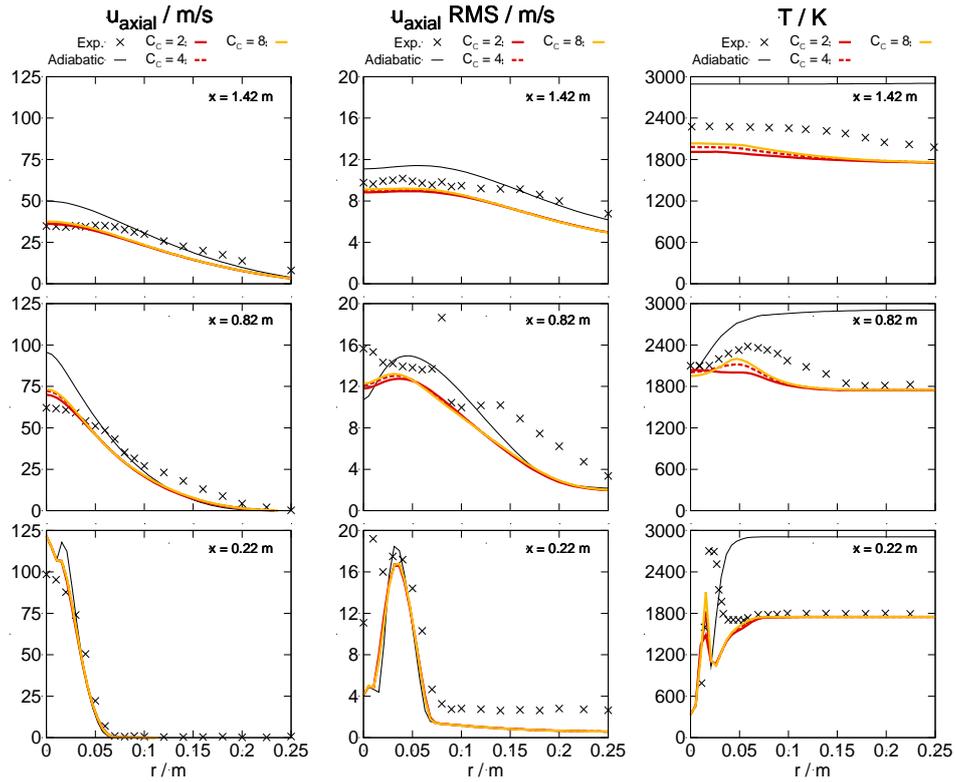


Bild 37: Radialprofile der gemessenen und simulierten Geschwindigkeit, ihrer Fluktuation und der Temperatur der Brennerkonfiguration A aus dem OXYFLAM Projekt

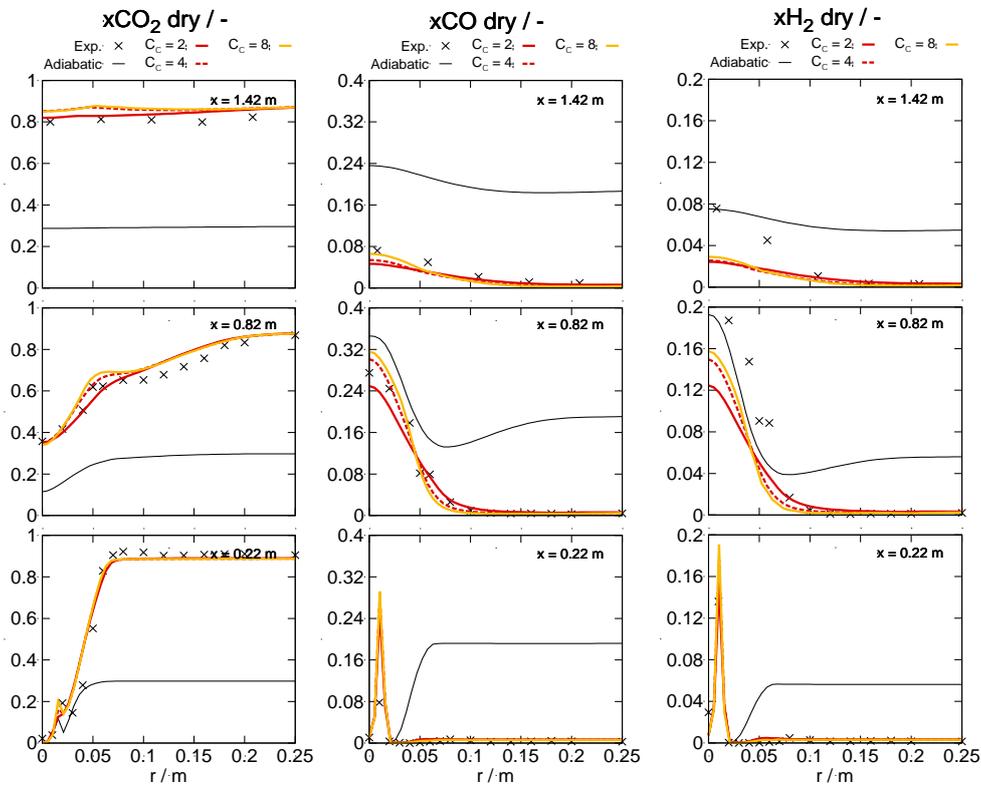


Bild 38: Radialprofile der gemessenen und simulierten Speziesprofile der Brennerkonfiguration A aus dem OXYFLAM Projekt

Um die Genauigkeit des neuen Flameletverfahrens genauer testen zu können, entschied sich der Projektpartner Universität Duisburg-Essen dazu, ein umfangreicheres Strahlungsmodell für das erweiterte Flameletmodell verfügbar zu machen und in den Solver zu implementieren. Bei diesem Strahlungsmodell handelt es sich um das P1 Modell, welches zur Berechnung der Strahlungseinflüsse in optisch dichten Problemstellungen genutzt wird. Da es sich bei dem vorliegenden Validierungsfall um einen solchen Fall handelt und auch alle folgenden Messungen die Charakteristiken optisch dichter Fälle aufweisen, war die Implementierung dieses Modells zwingend notwendig. Das derweil eingesetzte Strahlungsmodell ist für optisch dünne Problemstellungen entwickelt worden, es ist demnach davon auszugehen, dass es größere Fehler in den Simulationen hervorrufen kann.

Im Folgenden sind die Ergebnisse der Simulationen mit dem P1 Strahlungsmodell dargestellt (**Bild 39-40**). Obwohl lediglich das Strahlungsmodell geändert wurde, sind deutlich höhere Geschwindigkeiten in der Flamme zu erkennen, wodurch das Geschwindigkeitsfeld aus der Messung nicht exakt getroffen wird und die Flamme in axialer Richtung länger erscheint. Angesichts der Tatsache, dass in den Messungen ein Brennstoff mit einer höheren Dichte als Methan verwendet wurde, ist dieses Verhalten bei Verwendung des gleichen Massenstroms jedoch eine logische Konsequenz. Hinzu kommt, dass für diese Simulation ein konstanter Absorptionskoeffizient von $3,44 \text{ m}^{-1}$ verwendet wurde, der für die Abgaszusammensetzung bei 3050 K gilt, in der Flamme jedoch an Gültigkeit verliert. Mangels geeigneter Datenbanken ist die Integration eines speziegewichteten Absorptionskoeffizienten leider nicht möglich. Zwar wird die Temperatur im Brennernahbereich besser getroffen, doch werden dafür die Spezies in diesem Bereich durch einen zu schnellen Transport überbestimmt. Die Aussage, dass eine höhere Modellkonstante C_χ die Ergebnisse verbessert, kann durch die Simulation mit dem P1 Strahlungsmodell widerlegt werden. Im vorherigen Fall (**Bild 37**) wurde lediglich der Fehler des unzureichenden Strahlungsmodells durch die Modellkonstante kompensiert.

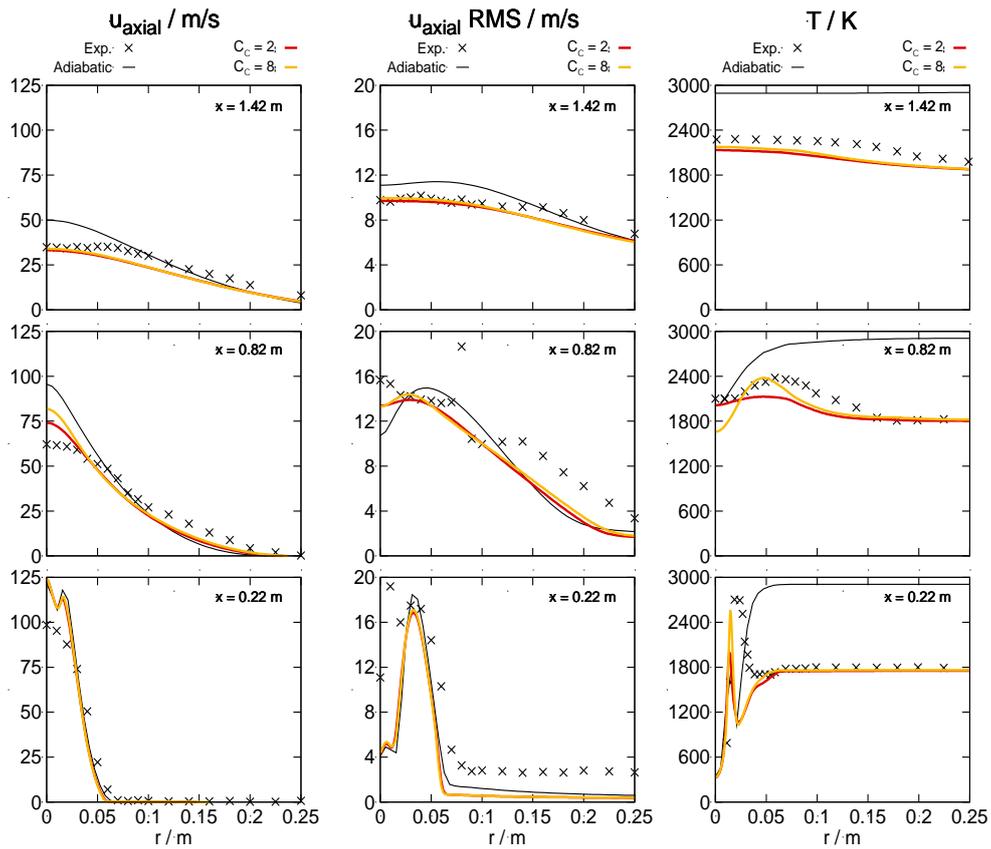


Bild 39: Radialprofile der gemessenen und simulierten Geschwindigkeit, ihrer Fluktuation und der Temperatur der Brennerkonfiguration A aus dem OXYFLAM Projekt – mit P1 Strahlungsmodell

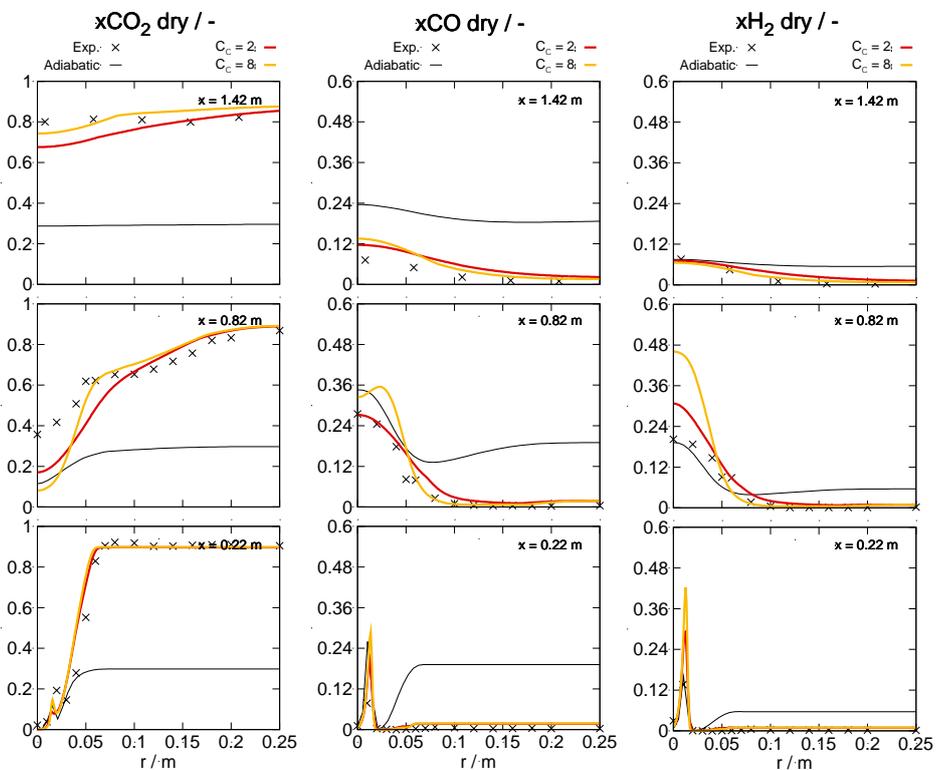


Bild 40: Radialprofile der gemessenen und simulierten Speziesprofile der Brennerkonfiguration A aus dem OXYFLAM Projekts – mit P1 Strahlungsmodell

6.2.3.4. Implementierung der Modelle in FLUENT

Nachdem sich das entwickelte Flameletmodell für die Oxy-Fuel Simulation als geeignet erwies, arbeiteten die Projektpartner GWI und Universität Duisburg-Essen intensiv an einer Strategie, dieses Modell möglichst benutzer- und wartungsfreundlich in der kommerziellen Software ANSYS FLUENT nutzbar zu machen. Da eine direkte Implementierung des Modells den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde und zudem Zugriff auf den proprietären Quellcode voraussetzen würde, wurde nach Alternativen gesucht.

Eine der wesentlichen Erkenntnisse der Arbeitsgruppen aus Duisburg und Bochum war, dass Oxy-Fuel-Flammen, verglichen mit konventionellen Methan-Luft-Flammen weitaus weniger empfindlich auf die lokal vorliegende Turbulenz reagieren. Reaktionskinetische Simulationen von Oxy-Fuel-Flamelets mit stark variierenden Streckungsraten zeigen einen vernachlässigbaren Effekt der Streckungsrate auf die Flamelets. Dadurch kann eine eigentlich vierdimensionale Chemie-Datenbank auf Flamelet-Basis mit den Dimensionen Mischungsbruch, Mischungsbruch-Varianz, Enthalpie und Streckungsrate ohne großen Verlust in eine dreidimensionale Tabelle bei konstanter Streckungsrate überführt werden, was vom Format her einer Datenbank auf Basis eines nicht-adiabaten chemischen Gleichgewichts entspräche.

Da FLUENT bereits solch ein Gleichgewichtsmodell zur Verfügung stellt, entstand die Idee, die verwendeten Gleichgewichtstabellen durch die Tabellen des neuen Flameletmodells zu ersetzen. Um alle Vorteile des bereits bestehenden FLUENT-Modells nutzen zu können, muss die Formatierung allerdings vollständig erhalten bleiben, da andernfalls Programmteile neu programmiert und parallelisiert werden müssen, die zwar zur Verfügung stehen, aber keine Schnittstelle für externe Routinen bieten.

Die Projektpartner einigten sich darauf, die Möglichkeit FLUENTS zu nutzen, dass Tabellen des thermochemischen Zustandes über ASCII-Dateien eingelesen werden können. Dieses Feature wird von FLUENT genutzt, um vorab generierte und gespeicherte Gleichgewichtstabellen mit Wärmeverlusten für weitere Simulationen nutzbar zu machen. Ob diese Tabellen jedoch mit einem Gleichgewichtsansatz oder mit dem weit komplexeren, nicht-adiabaten Flameletmodell berechnet werden, ist für die Routine erst einmal unerheblich. Die erstellten Flameletdaten können mit einer Tabelle, die exakt die Struktur einer PDF-Gleichgewichtstabelle aufweist, in Fluent eingelesen und so nutzbar gemacht werden ohne in die Programmstruktur einzugreifen. Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden. verdeutlicht den geplanten Ablauf zum Erstellen einer Flameletdatenbank für Fluent: da die Fluenttabellen bereits PDF-integrierte Größen enthalten soll, muss die Tabelle von dem PDF-Integrator erstellt werden, welcher als OpenFOAM-Tool entwickelt wurde.

Als Beispiel für die Struktur einer solchen Tabelle ist der Header in **Bild 42** dargestellt.

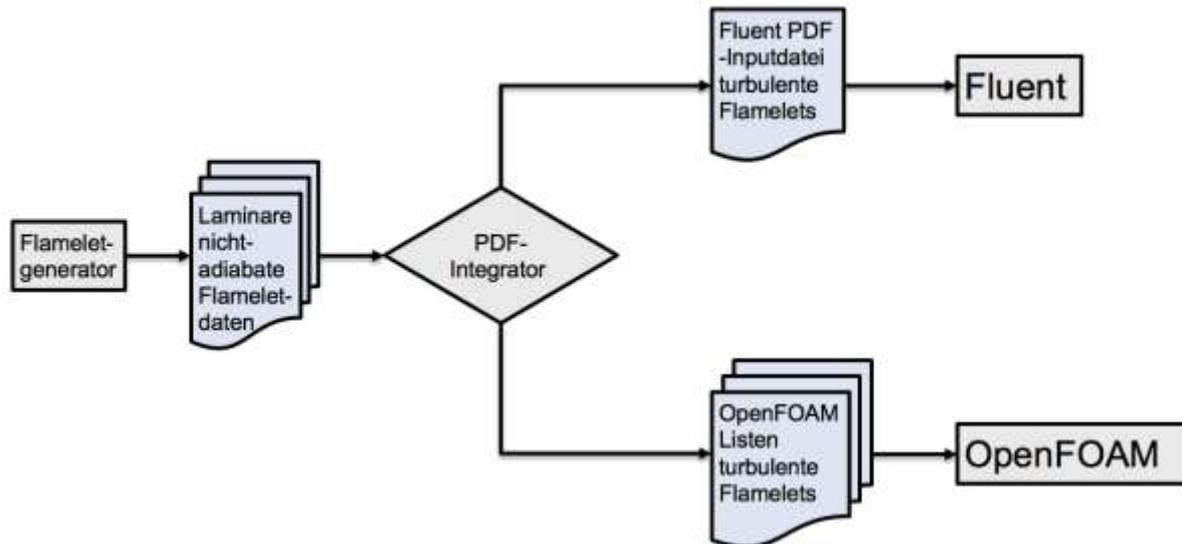


Bild 41: Ablauf der Erstellung einer code-unabhängigen Flamelet-Datenbank

```

(0 "Fluent14.5")

(0 "PDF Variables:")
(100 (101) (
(pdf/includeeequil? #t )
(pdf/frozenboundary? #t )
(pdf/multi? #f )
(pdf/adiabatic? #f )
(pdf/chemistry 0)
(pdf/empiricalfuel? #f )
(pdf/empiricalscnd? #f )
(pdf/parpremix #f )
(pdf/numspecies 20)
(pdf/initpressure 101325.000000)
(pdf/mintemp 298.000000)
(pdf/maxtempratio 1.000000)
(pdf/tloss 0.667000)
(pdf/tadd 0.250000)
(pdf/max-species 20)
(pdf/num-include-species 0)
(pdf/num-exclude-species 17)
(pdf/mole-or-mass? #f )
(pdf/exclude-species NO NO2 N2O H2O(L) N NH NH2 NH3 NNH HCN HNO CN H2CN HCNN HCNO HOCN HNCO )
(pdf/include-species )
(pdf/stream1temp 273.000000)
(pdf/stream2temp 273.000000)
(pdf/stream3temp 300.000000)
(pdf/numf1point 15)
(pdf/numf2point 21)
(pdf/richlimit1 1.000000)
(pdf/richlimit2 0.100000)
(pdf/numfvpoint 11)
(pdf/numstream 2)
(pdf/betapdf? 1)
(pdf/empshfuel 50000000.000000)
(pdf/empcpfuel 1000.000000)
(pdf/emphscnd 50000000.000000)
(pdf/empcpscnd 1000.000000)
(pdf/numenthalpy 14)
(pdf/nne/cold 10)
(pdf/nne/hot 4)
))
  
```

Bild 42: Header einer mit FLUENT generierten nicht-adiabaten PDF-Gleichgewichts-Chemiedatenbank

Da sich die Struktur dieser FLUENT-Tabellen als sehr komplex, wenig übersichtlich und vor allem nicht dokumentiert erwies, konnten bisher nur etwa 90 % der Tabelleneinträge entschlüsselt werden. Der Support durch die Entwickler und Eigentümer der Software ist bei diesem Unterfangen nicht gewährleistet, da Eigenentwicklungen und Manipulation der Software – auch zur Verbesserung dieser – unerwünscht sind. Die Arbeiten konnten daher innerhalb des Projektzeitraums nicht vollständig abgeschlossen werden.

Auf die Simulationen, die parallel zur Messkampagne, die am GWI im Dezember 2014 stattfand, durchgeführt wurden, wird im entsprechenden Kapitel 7 vertieft eingegangen.

6.3. Simulationsaktivitäten beim GWI in Essen

Parallel zu den Modellentwicklungsarbeiten an reduzierten Reaktionsmechanismen und nicht-adiabaten Flamelet-Bibliotheken in Bochum und Duisburg wurden am Gas- und Wärme-Institut in Essen Simulationen von semi-industriellen Oxy-Fuel-Feuerungen mit Hilfe industriüblicher CFD-Verbrennungsmodelle durchgeführt, wobei das Hauptaugenmerk auf den nicht-adiabaten PDF-Gleichgewichts-Modellen lag, die sich in einem vorangegangenen Projekt [43] als problematisch erwiesen hatten. Aufgrund von einigen Problemen und Verzögerungen bei der Durchführung der messtechnischen Untersuchungen im Projekt konzentrierten sich die Simulationsaktivitäten nach Rücksprache mit den Projektpartnern auf zwei gut vermessene Referenzfälle aus der Literatur, die bereits erwähnten Untersuchungen der International Flame Research Foundation (IFRF) im Rahmen der OXYFLAM-Projekte [27], [28] und die GWI-Messungen aus dem AiF-Forschungsprojekt „O₂-Glaswanne“ [43].

6.3.1. OXYFLAM-II-Untersuchungen, Brenner A (IFRF)

Die OXYFLAM-Messkampagnen der IFRF sind bereits an anderer Stelle erwähnt worden. Es handelt sich um hervorragend dokumentierte Messungen an einem semi-industriellen Brennerprüfstand, die Ende der 90er-Jahre in den Niederlanden durchgeführt wurden und bei denen Temperatur- und Speziesprofile im gesamten Ofenraum aufgezeichnet wurden. Als IFRF-Mitglied hat das GWI Zugriff auf diese Datensätze.

Bild 43 zeigt ein Schema und wesentliche Abmessungen des Furnace No. 1 und des OXYFLAM-Brenners A, die im Rahmen dieser Messkampagne zum Einsatz kamen. Im Bild sind außerdem die Darstellungsebenen zu sehen, die bei den GWI-Simulationen ausgewertet wurden.

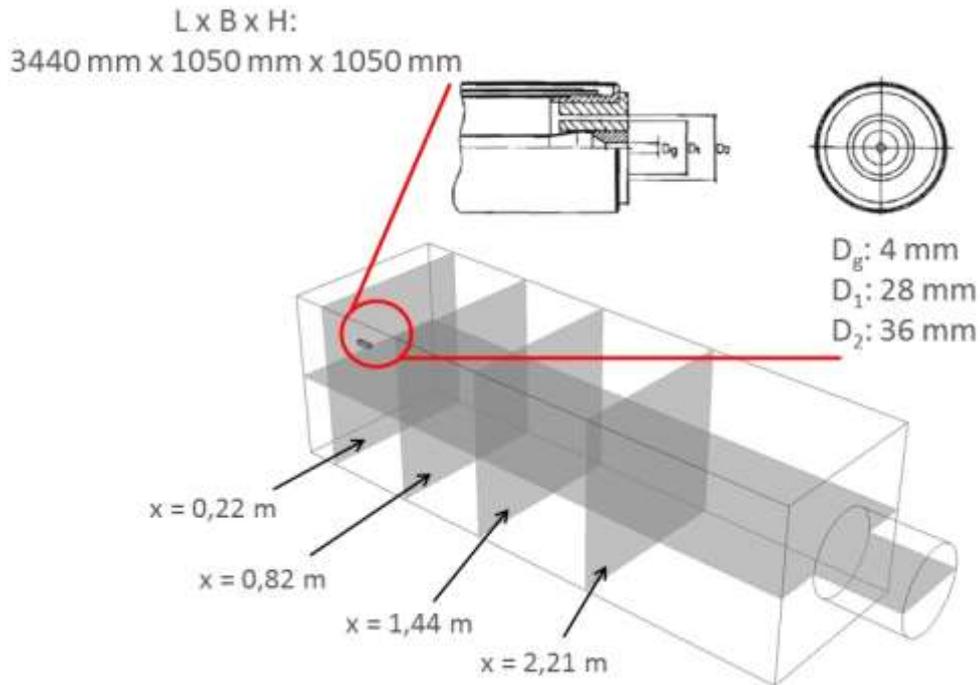
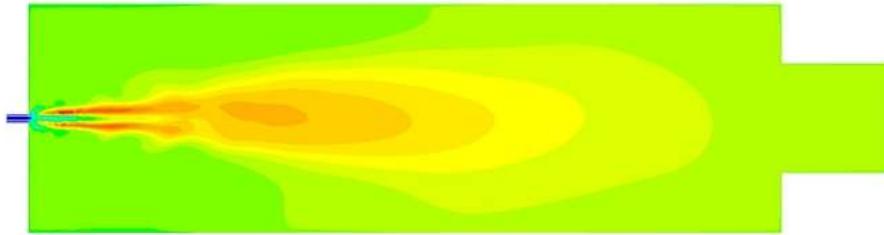


Bild 43: Schema und Abmessungen des IFRF Furnace No.1 und des OXYFLAM-Brenners A

Die Geometrie wurde für die stationären RANS-Simulationen mit einem Hybrid-Gitter mit etwa 1,7 Mio. Zellen vollständig vernetzt. Als Software für die CFD-Simulationen kam das Software-Paket FLUENT 14.5.7 der Firma ANSYS zum Einsatz. Als Turbulenzmodell wurde das „realizable $k-\epsilon$ “-Modell ausgewählt, als Verbrennungsmodell das nicht-adiabate PDF-Gleichgewichts-Modell, als Strahlungsmodell das „discrete ordinates“-Modell (DOM). Gerade die Performance des Verbrennungsmodells stand bei diesen Simulationen im Blickpunkt des Interesses, da bei den Simulationen des „O₂-Glaswanne“-Projekts dieses Modell (damals mit der FLUENT-Version 6.3) zu vollkommen unphysikalischen Ergebnissen geführt hatte [96].

Als Randbedingungen wurden eine Brennerleistung von 780 kW und eine Luftzahl von 1,03 vorgegeben, wobei für die Ofenwände ein flächengemittelter Wärmeverlust von 35 kW/m² angesetzt wurde. Das verwendete, in seiner Zusammensetzung recht komplexe Erdgas bestand aus 86 Vol.-% CH₄, 5,4 Vol.-% C₂H₆, 1,87 Vol.-% C₃H₈, 0,58 Vol.-% C₄H₁₀, 0,14 Vol.-% C₅H₁₂, 4,01 Vol.-% N₂, 1,79 Vol.-% CO₂ und 0,21 Vol.-% O₂. Als Oxidator wurde reiner Sauerstoff (100 Vol.-%) gewählt. Diese Angaben wurden der IFRF-Dokumentation entnommen.

Die **Bilder 44 - 48** zeigen die ermittelten Verteilungen von Temperatur und wesentlichen Spezies in der horizontalen Brennebene.



Temperatur [°C]



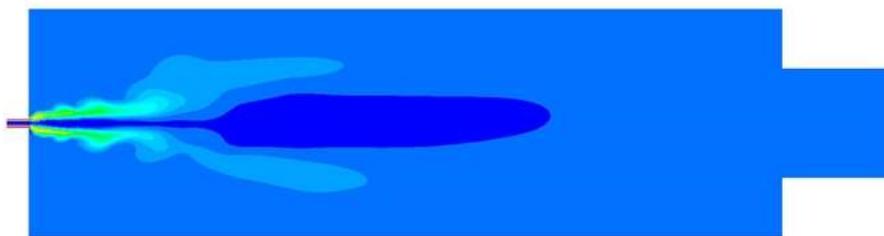
Bild 44: Simulierte Temperaturverteilung in der Brennebene



CO_{2,tr} [Vol.-%]



Bild 45: Simulierte CO₂-Verteilung in der Brennebene



O_{2,tr} [Vol.-%]



Bild 46: Simulierte O₂-Verteilung in der Brennebene

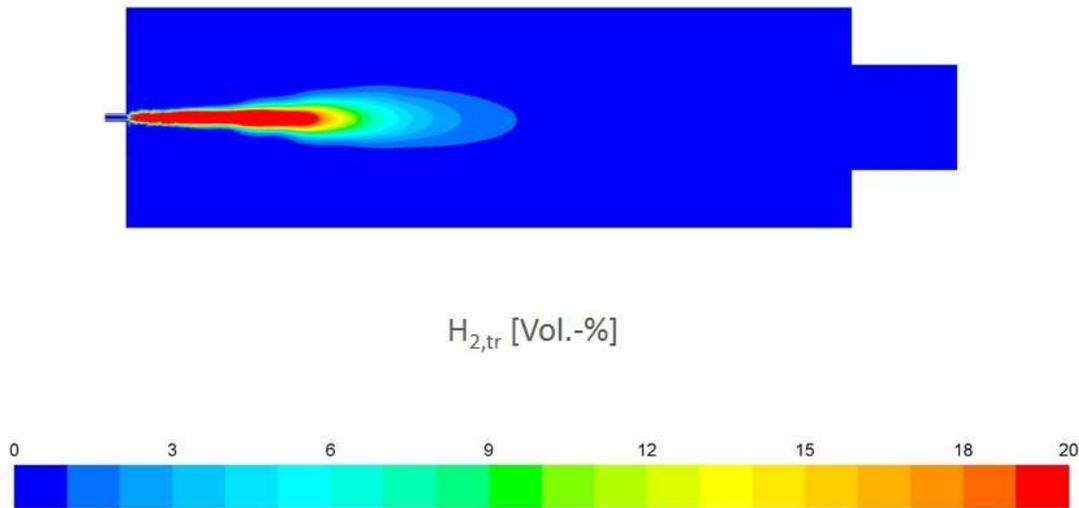


Bild 47: Simulierte H_2 -Verteilung in der Brennebene

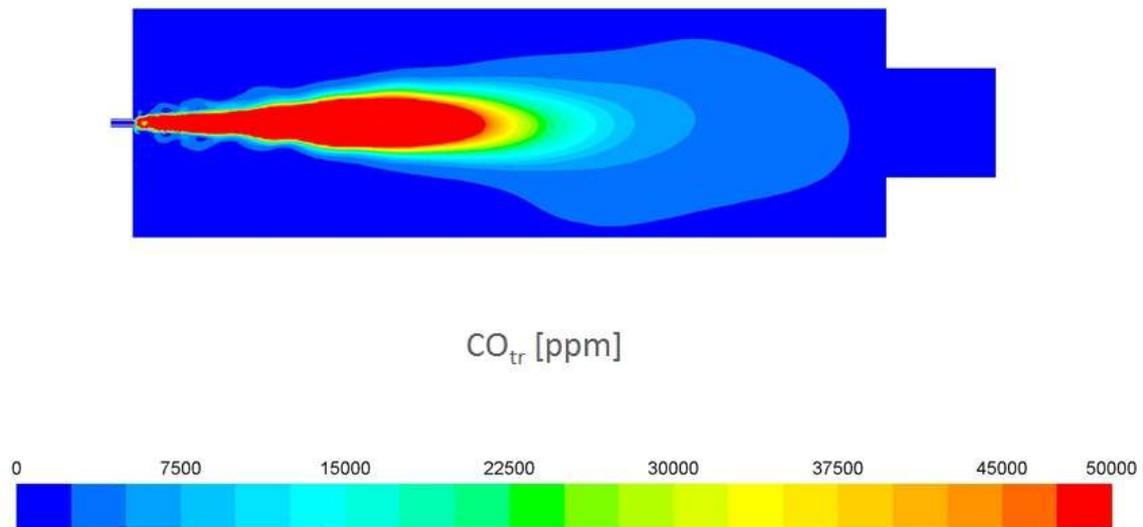


Bild 48: Simulierte CO-Verteilung in der Brennebene

Verglichen mit den PDF-Gleichgewichtssimulationen, die im AiF-Projekt „O₂-Glaswanne“ durchgeführt wurden, zeigt sich eine erhebliche Verbesserung. Die ermittelten Temperatur- und Speziesverteilungen erscheinen weitaus realistischer als die z. B. in [43], [96] vorgestellten Ergebnisse. Es wurde damals vermutet, dass es sich beim Versagen des PDF-Gleichgewichtsmodells nicht um ein grundsätzliches Problem des Modells, sondern vielmehr um ein Problem mit der Implementierung des Modells im CFD-Code handelte, das dazu führte, dass Wärmeverluste kaum Einfluss auf die chemischen Prozesse in der Verbrennung hatten. Im Gegensatz dazu zeigen die aktuellen Simulationen, dass das nicht-adiabate PDF-Gleichgewichtsmodell in ANSYS FLUENT mittlerweile wesentliche Aspekte der Oxy-Fuel-Verbrennung und insbesondere der Wärmeauskopplung physikalisch sinnvoll wiedergibt. Dennoch gibt es nach wie vor modell-bedingte Abweichungen zwischen Simulation und Messung, wie anhand des Vergleichs der radialen Profile der chemischen Spezies in verschiedenen axialen Abständen (0,22 m, 0,82 m, 1,44 m und 2,21 m Abstand vom Brennermund) deutlich wird. Dieser Vergleich ist von besonderem Interesse, da sich hierdurch im

Detail zeigen lässt, wie realistisch das Reaktionsmodell die verschiedenen Phasen der Verbrennung in der Reaktionszone abbilden kann.

Die **Bilder 49 - 52** zeigen die gemessenen und simulierten radialen Profile der Spezies CO_2 , O_2 , H_2 und CO in verschiedenen axialen Abständen. Während bei den CO_2 -Profilen eine sehr gute qualitative und auch quantitative Übereinstimmung von Messung und Simulation erreicht wurde, kommt es bei O_2 , H_2 und CO zu größeren Abweichungen. Bei den O_2 -, CO - und H_2 -Profilen hingegen wird deutlich, dass beim PDF-Gleichgewichts-Modell eine deutlich schnellere Verbrennung angenommen wird, als sich durch die Messungen bestätigen lässt. So zeigt das gemessene O_2 -Profil (**Bild 50**) für einen Abstand von 0,22 m vom Brennermund eine maximale O_2 -Konzentration von etwa 85 Vol.-%, während die Simulation hier auf Maximal-Werte von weniger als 50 Vol.-% kommt. Gleichzeitig ergeben sich, verglichen mit der Simulation, bei dieser axialen Position, deutlich geringere lokale CO - und H_2 -Konzentrationen. Die axialen Maxima dieser Spezies treten laut Messung erst weiter stromab auf, d. h. die Verbrennung findet real langsamer statt als vom Modell vorhergesagt. Die in der Simulation ermittelten maximalen H_2 -Konzentrationen (s. **Bild 52**) sind zudem um etwa den Faktor 3 zu hoch.

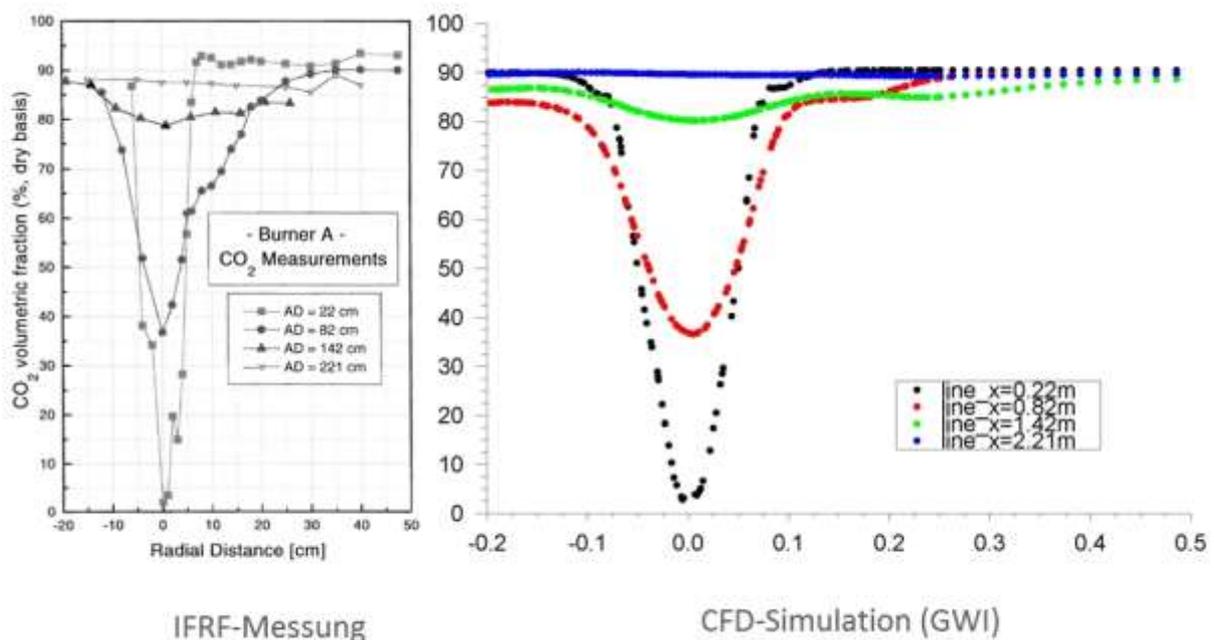


Bild 49: Vergleich der gemessenen (links) und simulierten (rechts) CO_2 -Profile in verschiedenen axialen Abständen

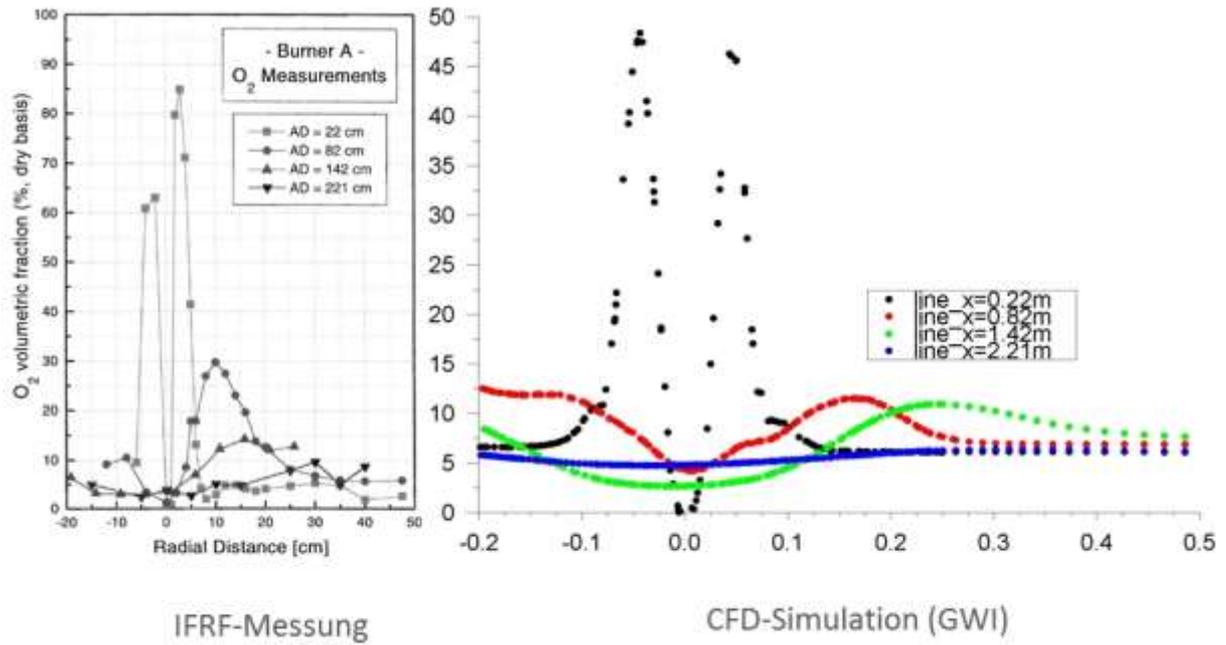


Bild 50: Vergleich der gemessenen (links) und simulierten (rechts) O₂-Profile in verschiedenen axialen Abständen

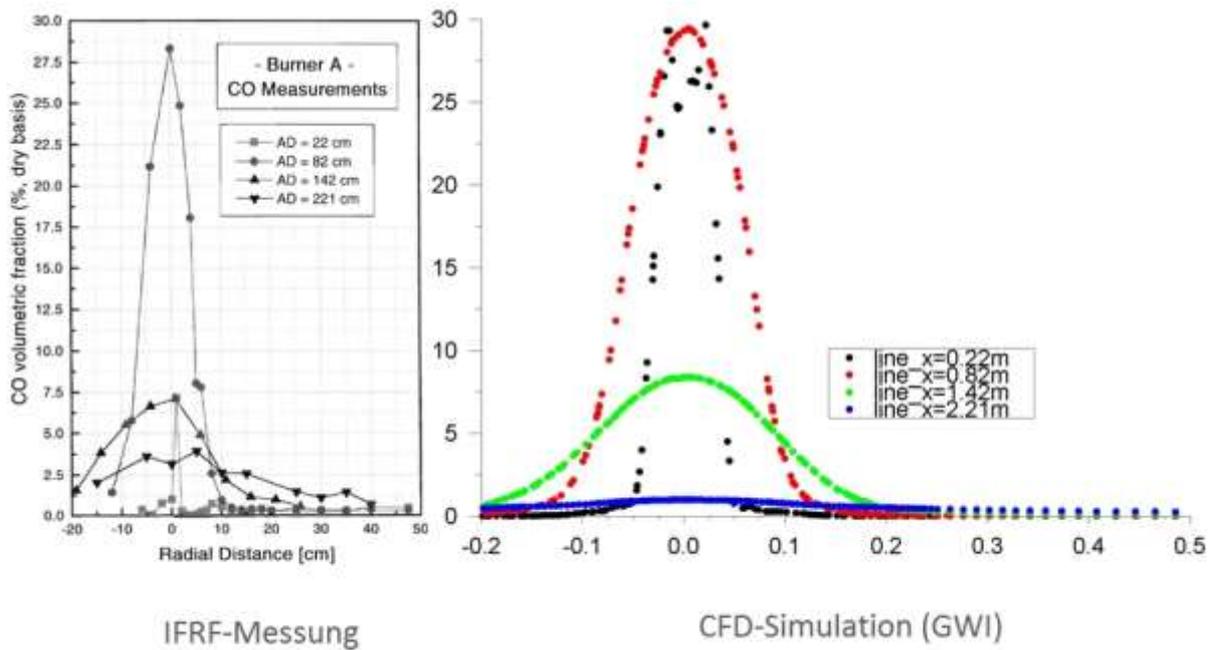


Bild 51: Vergleich der gemessenen (links) und simulierten (rechts) CO-Profile in verschiedenen axialen Abständen

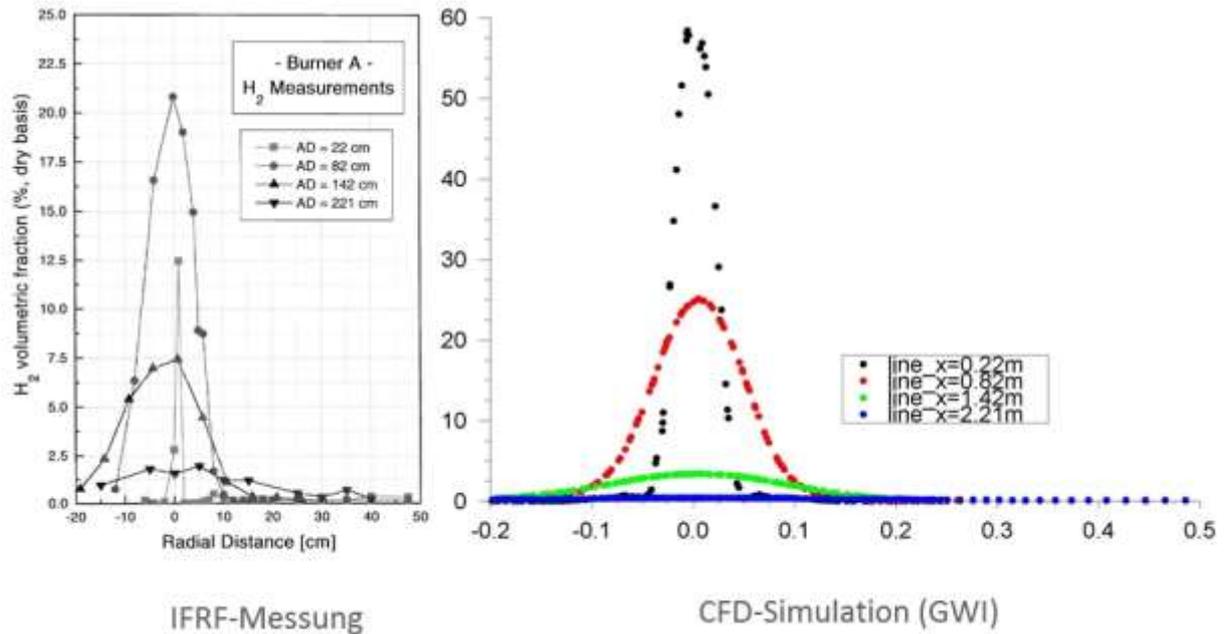


Bild 52: Vergleich der gemessenen (links) und simulierten (rechts) H₂-Profile in verschiedenen axialen Abständen

Die zu schnelle Verbrennung in der Simulation lässt sich durch die dem Gleichgewichtsmodell implizit zugrunde liegende Annahme einer Chemie, die, abhängig von der lokalen Mischung von Brenngas und Oxidator, quasi unmittelbar den chemischen Gleichgewichtszustand erreicht, erklären. Auch die in der Reaktionszone zu hohen lokalen H₂-Konzentrationen sind hierauf zurückzuführen. Reaktionsmodelle wie etwa Flamelet-Ansätze, die die Kinetik der Verbrennung bei der Verbrennungsmodellierung berücksichtigen, können die Prozesse in der Reaktionszone realistischer abbilden, wie auch anhand der OpenFOAM-Simulationen der Universität Duisburg-Essen deutlich wird. Gleichzeitig wird anhand der Simulationen am GWI aber auch deutlich, dass die Vorhersagen des im kommerziellen CFD-Code ANSYS FLUENT implementierten PDF-Gleichgewichtsmodells außerhalb der Reaktionszone qualitativ und quantitativ gut mit den IFRF-Messungen übereinstimmen. Da bei der Auslegung von großtechnischen Feuerungssystemen, gerade im Bereich der Thermoprozesstechnik, der Fokus meist weniger auf der eigentlichen Verbrennungsmodellierung, sondern vielmehr auf der Wärmefreisetzung und den anschließenden Wärmeübertragungsprozessen im Ofenraum liegt, scheint das nicht-adiabate PDF-Gleichgewichtsmodell in seiner aktuellen Implementierung in FLUENT (Version 14.5.7) ein gangbarer Kompromiss zwischen Genauigkeit und Anwendbarkeit zu sein.

6.3.2. Simulation der O₂-Glaswanne-Messung

In Anbetracht der recht zufriedenstellenden Ergebnisse, die sich beim Vergleich zwischen den IFRF-Messungen und den Rechnungen mit dem nicht-adiabaten PDF-Gleichgewichtsmodell ergaben, wurden am GWI auch einige der im Rahmen des Vorgängerprojekts „O₂-Glaswanne“ durchgeführten Messungen noch einmal mit diesem Modell simuliert. Von besonderem Interesse war vor allem auch der Vergleich mit den Simulationen, die

auf einem EDC-Ansatz in Kombination mit einem recht umfangreichen reduzierten Reaktionsmechanismus mit 17 Spezies und 50 Elementarreaktionsgleichungen basierten. **Bild 53** gibt einen Überblick über Brenner- und Ofenraumgeometrie sowie die anliegenden Randbedingungen.

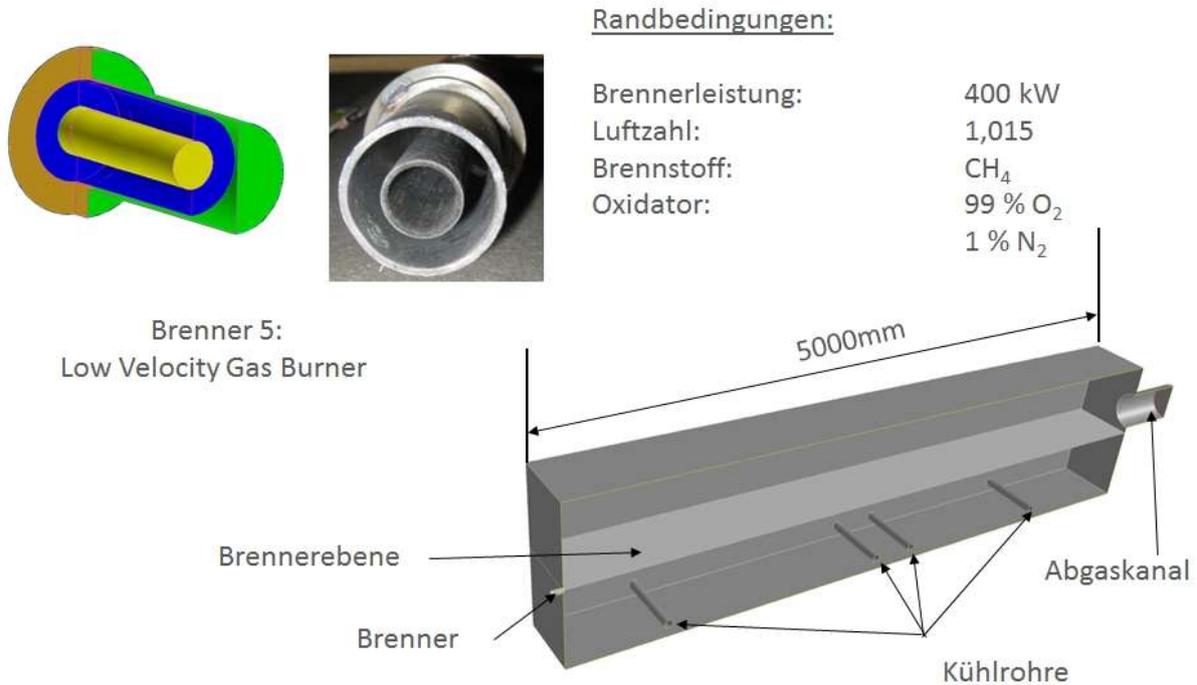


Bild 53: Geometrien und Randbedingungen des Brenners 5 aus "O2-Glaswanne"[43]

Die **Bilder 54** und **55** zeigen einen Vergleich der in „O2-Glaswanne“ durchgeführten Feldmessungen und EDC-Simulationen mit den nun mit dem PDF-Gleichgewichtsmodell durchgeführten Simulationen.

Die CO₂-Konzentrationsverteilung (**Bild 54**) zeigt eine sehr zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen der Messungen und den beiden Simulationsergebnissen. Hierbei ist insbesondere zu berücksichtigen, dass die benötigte Rechenzeit für die Rechnung mit EDC-Modell aufgrund der höheren Anzahl zu lösender Transportgleichungen um ein Vielfaches länger war (mehrere Wochen) als für die Simulation mit dem Gleichgewichtsmodell (2 - 3 Tage).

Der Vergleich der CO-Verteilungen hingegen zeigt, dass die Gleichgewichtsannahme bei Zwischenspezies wie etwa CO bei der Oxy-Fuel-Verbrennung an ihre Grenzen stößt. Während die CO-Verteilung qualitativ gut wiedergegeben wird, gibt es jedoch erhebliche quantitative Abweichungen. Eine genauere Vorhersage der Prozesse, die sich in der Reaktionszone abspielen, erfordert offensichtlich eine detailliertere Modellierung der zugrundeliegenden Chemie, etwa mit Hilfe geeigneter reduzierter Reaktionsmechanismen in Kombination mit dem EDC-Ansatz, oder durch detailliertere Chemiedatenbanken.

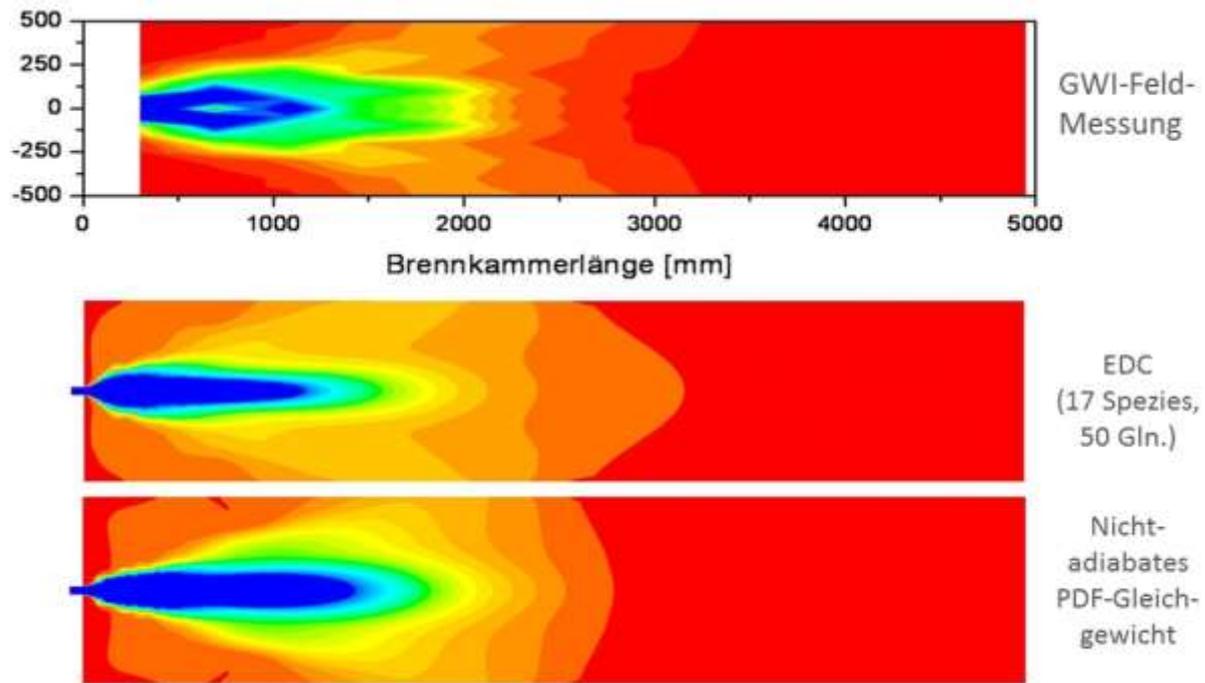


Bild 54: Vergleich von Feldmessung, EDC-Simulation und neu durchgeführter Simulation mit dem nicht-adiabaten PDF-Gleichgewichtsmodell für CO₂ (FLUENT 14.5)

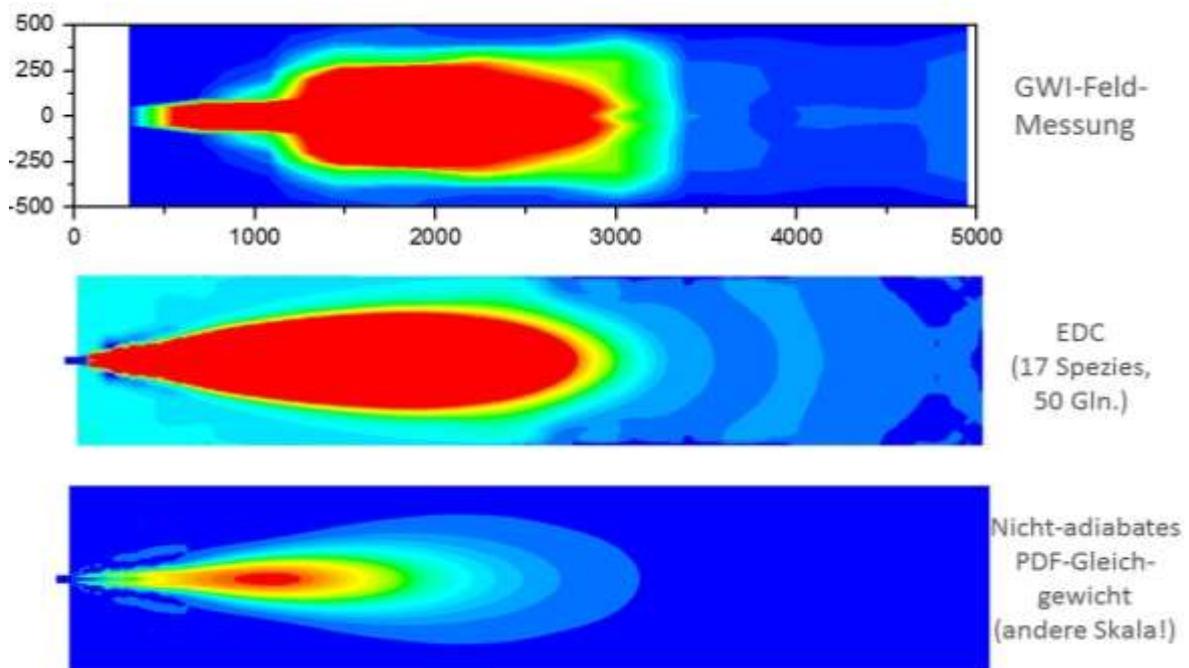


Bild 55: Vergleich von Feldmessung, EDC-Simulation und neu durchgeführter Simulation mit dem nicht-adiabaten PDF-Gleichgewichtsmodell für CO (FLUENT 14.5)

6.4. Simulation einer oxy-fuel-befeuerten Industrieofenanlage

Zum Abschluss des Projekts war ursprünglich geplant, die untersuchten und im Rahmen des Projekts entwickelten Reaktionsmodelle auch anhand der Simulation einer industriellen Oxy-Fuel-Feuerung zu prüfen. Leider gelang es nicht, einen Betreiber einer solchen Anlage hierfür im vorgesehenen Zeitfenster zu gewinnen, sodass auf die Vermessung einer realen Industrieanlage und den anschließenden Vergleich mit einer CFD-Simulation verzichtet werden musste.

7. Experimentelle Untersuchungen

Die Arbeiten im Bereich Modellentwicklung und -implementierung wurden begleitet durch detaillierte messtechnische Untersuchungen von zwei Oxy-Fuel-Brennern im Hochtemperatur-Brennerprüfstand des Gas- und Wärme-Instituts, wobei neben Speziesfeldmessungen auch Temperaturmessungen durch die Universität Siegen im Ofenraum mit Hilfe des bereits beschriebenen CARS-Lasermessverfahrens durchgeführt wurden. Während CARS-Messverfahren bei der „klassischen“ Verbrennung von Erdgas mit dem Oxidator Luft bereits im Einsatz sind, muss das Messverfahren für die Oxy-Fuel-Verbrennung angepasst werden. Insbesondere die Wahl eines geeigneten Moleküls als Informationsquelle ist hier von Bedeutung. Daher wurden im Vorfeld entsprechende experimentelle durchgeführt.

7.1. Vorbereitung und Implementierung der CO- und O₂-Moleküldaten in die vorhandene Auswerte-Software

Für die Temperaturmessungen war der Lehrstuhl für Technische Thermodynamik (TTS) der Universität Siegen verantwortlich, der diese Messung unter Nutzung der CARS-Messtechnik (CARS: Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy) durchgeführt hat. Im Rahmen des Projektes wurde das CARS-Verfahren anwendungsbezogen weiterentwickelt und die Eignung für den Einsatz in einem industriellen Hochtemperaturprozess untersucht. Als am besten geeignete Variante hat sich hier das Vibrations-CARS-Verfahren herauskristallisiert, das für die besonderen Gegebenheiten der industriellen Oxy-Fuel-Feuerung angepasst wurde. Die notwendigen Molekülinformationen für das CO- und das O₂-Molekül wurden in die Berechnungs- und Auswertesoftware integriert. In **Bild 56** sind beispielhaft berechnete CO- und O₂-Spektren für eine Konzentration von 10 Vol.-% CO beziehungsweise O₂ bei verschiedenen Temperaturen dargestellt. Die Gastemperatur ergibt sich durch den Vergleich einer experimentellen Messung mit einer Bibliothek mit berechneten Spektren.

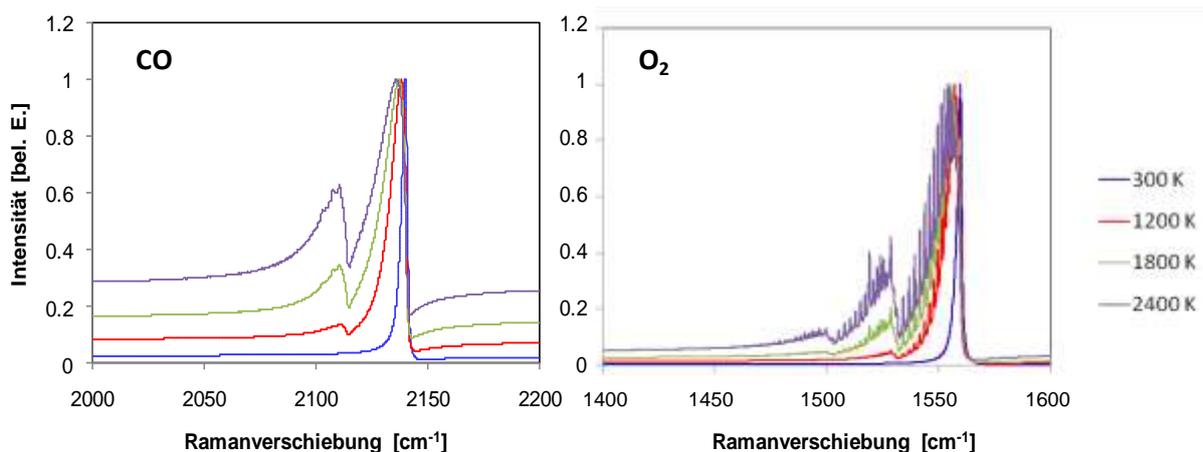


Bild 56: Berechnete CO- und O₂-Vibrations-CARS Spektren (Quelle: Universität Siegen)

Parallel zu den theoretischen Arbeiten wurde eine experimentelle Vibrations-CARS-Messsonde unter Laborbedingungen am Lehrstuhl für Technische Thermodynamik in Siegen aufgebaut. Verwendet wurde ein frequenzverdoppelter Nd: YAG Laser, dessen Ausgangsleis-

tung bei über 800 mJ für eine Wellenlänge von 532 nm liegt. In den Laborversuchen war allerdings nur ein Bruchteil dieser Leistung notwendig. Die Pulsdauer liegt bei 8 ns und die Pulswiederholrate bei 10 Hz. Weiterhin kam ein kommerzieller Farbstofflaser zum Einsatz. Mischungen der Laserfarbstoffe, Rhodamin B, Rhodamin 101 und Rhodamin 6G gelöst in Ethanol, wurden auf die zu analysierenden Energieniveaus des N_2 -, O_2 - beziehungsweise CO -Moleküls entsprechend abgestimmt. Außerdem wurde eine Detektionseinheit aufgebaut, die aus einem Spektrometer mit einem optischen Gitter (2400 Linien/mm) sowie einer „charge coupled device“ (CCD) Kamera bestand. Als Messgeometrie wurde eine sogenannte USED CARS-Geometrie genutzt, bei der die verwendeten Laserstrahlen konzentrisch ineinander geführt werden (siehe **Bild 57**). Dadurch erfahren alle Strahlen dieselben Ablenkungen durch lokale Dichtegradienten, sind aber, bis sie sich im Fokus treffen, trotzdem räumlich getrennt. Lokal unterschiedliche Dichtegradienten sind typisch für die zu untersuchende turbulente Oxy-Fuel-Flamme und aufgrund der langen optischen Wege am Brennerversuchsstand des Gas- und Wärme-Institut in Essen musste dieser Einfluss auf das Messsignal minimiert werden.

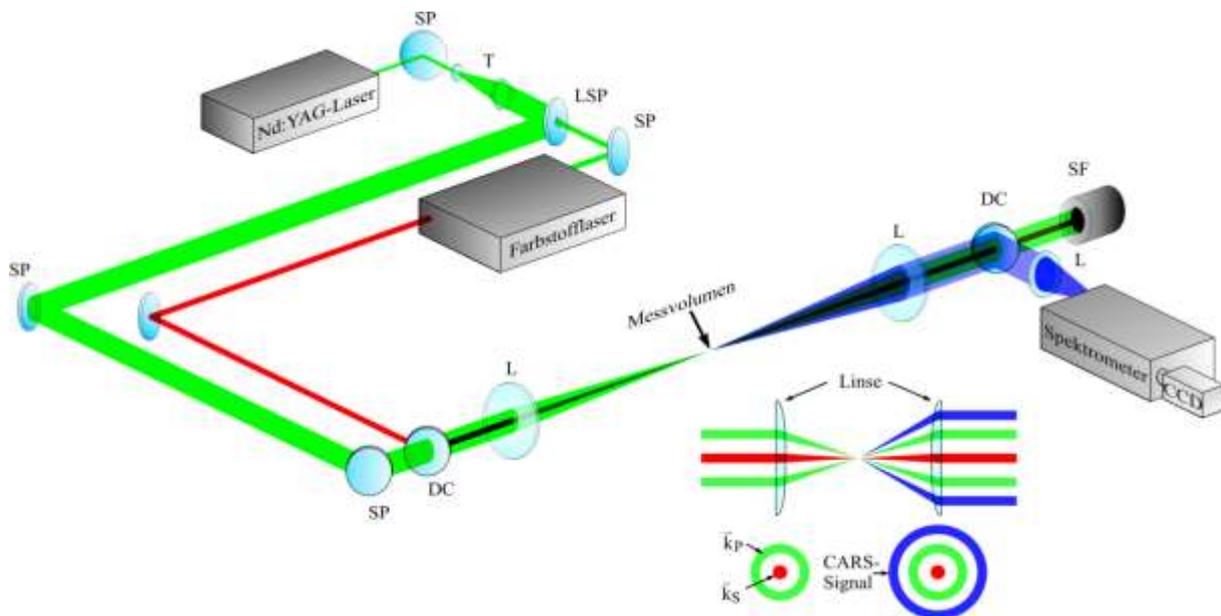


Bild 57: Experimenteller CARS Aufbau: SP, Spiegel; T, Teleskop; LSP, Lochspiegel; DC, Dichroitischer Spiegel; L, Linse; SF, Strahlfall; CCD, (charge coupled device) Kamera (Quelle: Universität Siegen)

7.2. Messung der Temperaturverteilung über das CO - und das O_2 -Molekül an einem CO /Luft-McKenna-Laborbrenner

Zur Verifizierung der Vibrations-CARS-Sonde wurde ein McKenna-Laborbrenner herangezogen. In Laborversuchen in Siegen wurde so die Sonde vor Ihrem Einsatz am Brennerprüfstand in Essen verifiziert und die notwendigen Voruntersuchungen durchgeführt. In einer ersten Versuchsreihe wurden sowohl die Temperaturverteilung in einer Flamme über das CO -Molekül als auch parallel dazu über das N_2 -Molekül bestimmt. Das diente zur Validierung der Auswerte- und Berechnungssoftware, da die Molekülinformationen für das Stickstoffmolekül gut bekannt sind. Hierzu wurde der Farbstofflaser mit einer Mischung aus Rhodamin B

und Rhodamin 101 gelöst in Ethanol betrieben. Die spektrale Breite des Farbstofflasers deckte in diesem Fall somit die Vibrationsenergieniveaus sowohl des CO- als auch des N₂-Moleküls ab, sodass beide simultan detektiert werden konnten.

Die laminare vorgemischte CO/Luft Flamme wurde mit $\lambda = 0,6$ bei einem Brennstoffvolumenstrom von 3,3 l_N/min betrieben. Zur Stabilisierung der Flamme wurde eine laminare Außenströmung von 20 l_N/min Luft genutzt und ein Staukörper oberhalb der Flamme angebracht (siehe **Bild 58**). Die zu erwartende adiabate Flammentemperatur wurde mit $T_{\text{adiabat}} = 2297$ K berechnet.

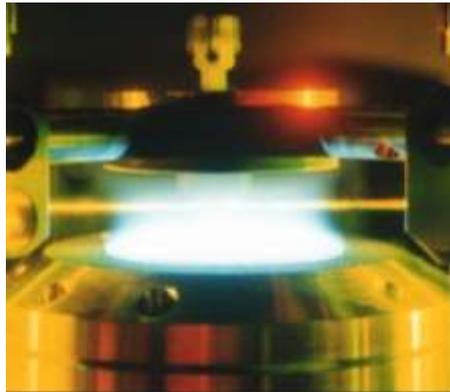
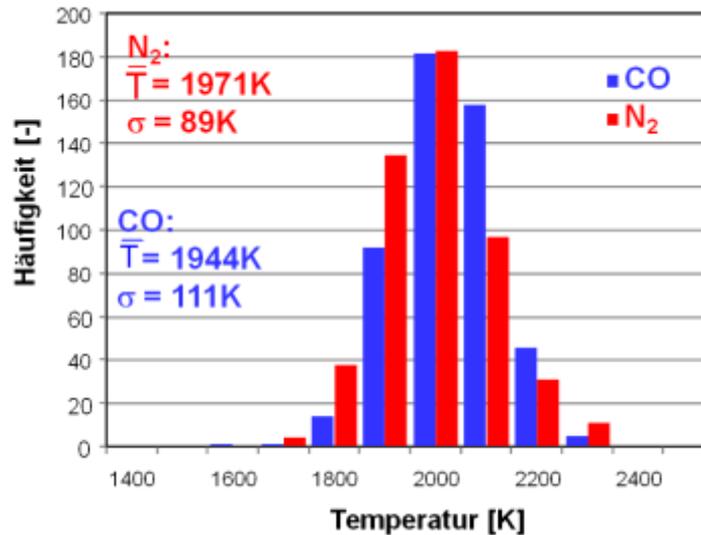


Bild 58: Foto des McKenna-Brenners mit vorgemischter CO-Flamme und Flammenstabilisierung

In **Bild 59** ist beispielhaft eine Häufigkeitsverteilung einer simultanen CO- und N₂-Temperaturmessung dargestellt. Das Messvolumen befand sich 4,1 mm über dem Brennerausgang. Die in **Bild 59** angegebene mittlere Temperatur, bestimmt aus 500 Einzelmessungen, liefert für beide Moleküle vergleichbare Ergebnisse. Die Differenz zur adiabaten Flammentemperatur kann durch Wärmeverluste z. B. an die Umgebung, den gekühlten Brenner als auch an die Stauplatte erklärt werden. Auch die Standardabweichung ist bei beiden Methoden vergleichbar, die Temperaturbestimmung über das N₂-Molekül liefert eine Standardabweichung von $\sigma = 89$ K, die über das CO-Molekül weist eine geringfügig höhere Standardabweichung von $\sigma = 111$ K auf. Ein Vergleich mit der Literatur zeigt, dass sich die Werte für die Standardabweichung im typischen Bereich für eine solche CARS-Messsonde befinden.

Bild 59: Vergleich der Häufigkeitsverteilung der simultanen CO- und N₂-Temperaturmessung

Um die Temperaturbestimmung über das Sauerstoffmolekül zu überprüfen, wurde der McKenna-Brenner mit einer überstöchiometrischen CO/Luft-Flamme betrieben ($\lambda = 1,7$). Der Brennstoffmassenstrom betrug $2,0 \text{ l}_N/\text{min}$ und die Außenströmung $15 \text{ l}_N/\text{min}$ Luft. Für diesen Fall berechnet sich die adiabate Flammentemperatur zu $T_{\text{adiabat}} = 1941 \text{ K}$. In **Bild 60** ist beispielhaft die gemessene Häufigkeitsverteilung $1,0 \text{ mm}$ über dem Brennerausgang dargestellt. Eine simultane Temperaturmessung über das O₂-Molekül und das N₂-Molekül war mit dieser CARS-Variante nicht möglich, da die entsprechenden Vibrationsenergieniveaus der beiden Moleküle spektral zu weit entfernt sind. Deutlich ist zu erkennen, dass die gemessene mittlere Temperatur von 1827 K sich nahe der adiabaten Flammentemperatur befindet. Die etwas höhere Differenz ist hier durch noch größere Wärmeverluste zu erklären, da die Flammenfront näher an der Brenneröffnung lag. Die Standardabweichung von $\sigma = 113 \text{ K}$ ist vergleichbar mit den Werten für das CO- beziehungsweise das N₂-Molekül. Somit lässt sich festhalten, dass auch O₂ mit den verwendeten Moleküldaten zur Temperaturbestimmung gut geeignet ist.

Für die Temperaturbestimmung an dem Prüfstand am Gas- und Wärme-Institut in Essen wurde das Sauerstoffmolekül gewählt, da bei gleicher Konzentration, das O₂-Molekül eine höhere Signalintensität verspricht als das CO-Molekül. Zudem kann durch eine überstöchiometrische Fahrweise sichergestellt werden, dass überall im Brennraum ausreichend O₂ für eine gute Signalstärke zur Verfügung steht, während CO nur in der Reaktionszone vorliegt.

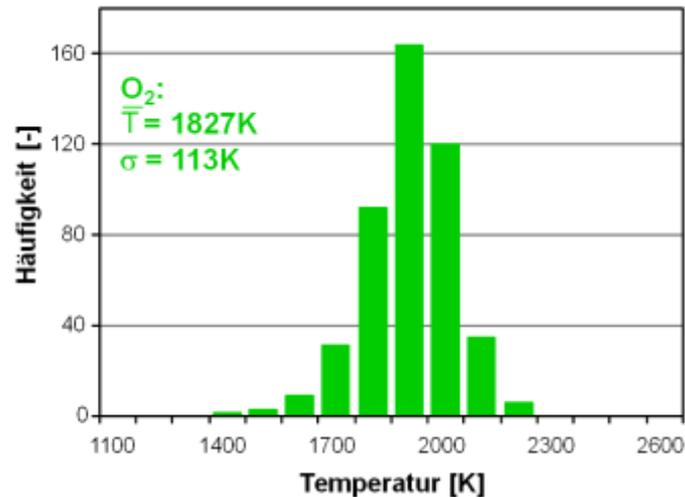


Bild 12: Häufigkeitsverteilung der O₂-Temperaturmessung (Quelle: Universität Siegen)

7.3. Vorbereitung der Vibrations-CARS-Sonde für den Einsatz am Prüfstand

Die in Siegen am Lehrstuhl für Technische Thermodynamik konzipierte und experimentell überprüfte Vibrations-CARS-Sonde wurde nach abgeschlossener Verifizierung an dem Hochtemperaturversuchsofen des Gas- und Wärme-Instituts in Essen aufgebaut. Hierzu musste der CARS-Prüfstand aus messtechnischer Sicht kaum verändert werden, so dass alle in den vorhergehenden Arbeitsabschnitt beschriebenen Messergebnisse weiterhin Gültigkeit besitzen. Jedoch musste der CARS-Prüfstand auf eine mobile Plattform montiert werden, um den veränderten Messgegebenheiten am Versuchsstand am Gas- und Wärme-Institut gerecht zu werden (siehe dazu **Bild 61**).



Bild 61: Vibrations-CARS-Messsonde am Oxy-Fuel-Brenner-Prüfstand am Gas- und Wärme-Institut in Essen (Quelle: Universität Siegen)

Nach dem Wiederaufbau der CARS-Messsonde in Essen wurden vorbereitende Messungen am Versuchsofen durchgeführt, um einerseits die Funktionalität nach dem Transport zu überprüfen und andererseits den geringfügig variierten Messaufbau zu charakterisieren.

Hierzu wurde einerseits ein nichtresonantes Signal aufgenommen sowie die Größe des Messvolumens als auch die Lage dessen am Versuchsstand experimentell ermittelt.

7.4. Erste Messkampagne am GWI-Hochtemperatur-Brennerprüfstand, Sommer 2014

Im Rahmen des Forschungsvorhabens war geplant, in einer Messkampagne zwei handelsübliche Oxy-Fuel-Brenner, die von Industriepartnern unentgeltlich für dieses Projekt zur Verfügung gestellt wurden, detailliert zu vermessen. Diese Messkampagne war ursprünglich für den Sommer 2014 vorgesehen. Da einer der Brenner (Brenner 1) jedoch beim Hochfahren des Brennerprüfstands beschädigt wurde, konnte in der Messkampagne im Sommer lediglich Brenner 2 vermessen werden. In einer zweiten Messkampagne im Dezember 2014 wurde dann Brenner 1 von GWI und TTS vermessen.

Eine Besonderheit der Messungen war, dass die Brenner mit einem höheren Sauerstoffüberschuss betrieben wurden als in der industriellen Praxis üblich ($\lambda \approx 1,12$). Hier wurde auf die CARS-Messungen Rücksicht genommen, die das Sauerstoffmolekül in ausreichender lokaler Konzentration als Signalträger benötigen. Durch das erhöhte Sauerstoffangebot konnte dies für den gesamten Brennraum sichergestellt werden. Die Aussagekraft der Messkampagne wurde hierdurch nicht beeinträchtigt, da die Messungen in erster Linie dazu dienten, Vergleichswerte für CFD-Simulationen bereitzustellen. Die Brennerleistung lag bei 400 kW, Brenngas war Erdgas H.

Anhand der Speziesverteilungen (**Bilder 63 - 66**) wird deutlich, dass es bei den Messungen zu erheblichen Falschlufteinbrüchen im Ofenraum gekommen ist. Bei einer Oxy-Fuel-Verbrennung mit einem λ von etwa 1,12 sollte die trockene Kohlendioxid-Konzentration im Abgas bei etwa 80 Vol.-% liegen, die Messwerte liegen jedoch deutlich darunter. In der Verteilung ist zudem zu sehen, wie sich das CO₂ in der Reaktionszone bildet, im Anschluss aber erheblich verdünnt wird. Die Positionen der Falschlufteinbrüche können anhand der CO₂-Verteilung in etwa abgeschätzt werden.

Randbedingungen:

Leistung:	400 kW
Luftzahl:	1,12
Brennstoff:	Erdgas H
Oxidator:	100 % O ₂

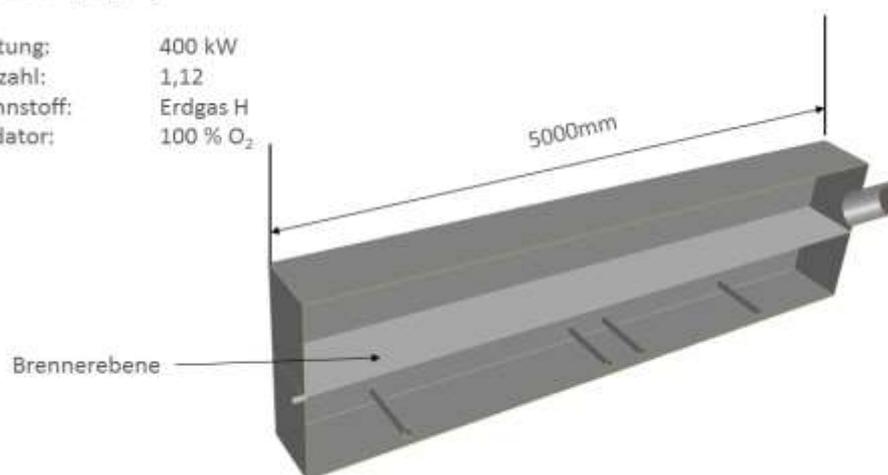


Bild 62: Prüfstandgeometrie und Randbedingungen der Messkampagne

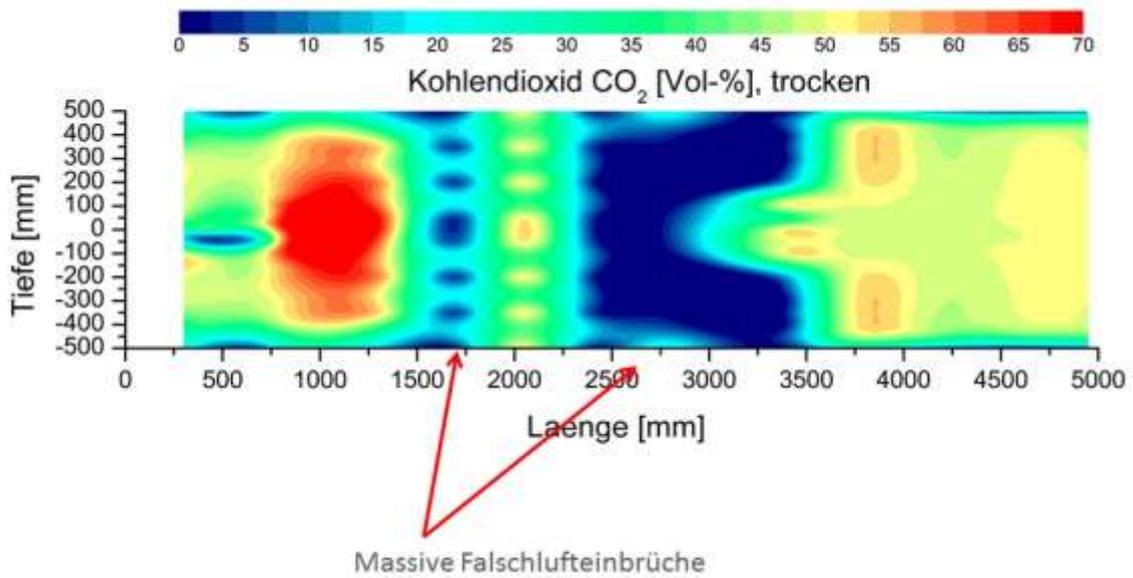


Bild 63: Gemessene CO₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammerebene für Brenner 2

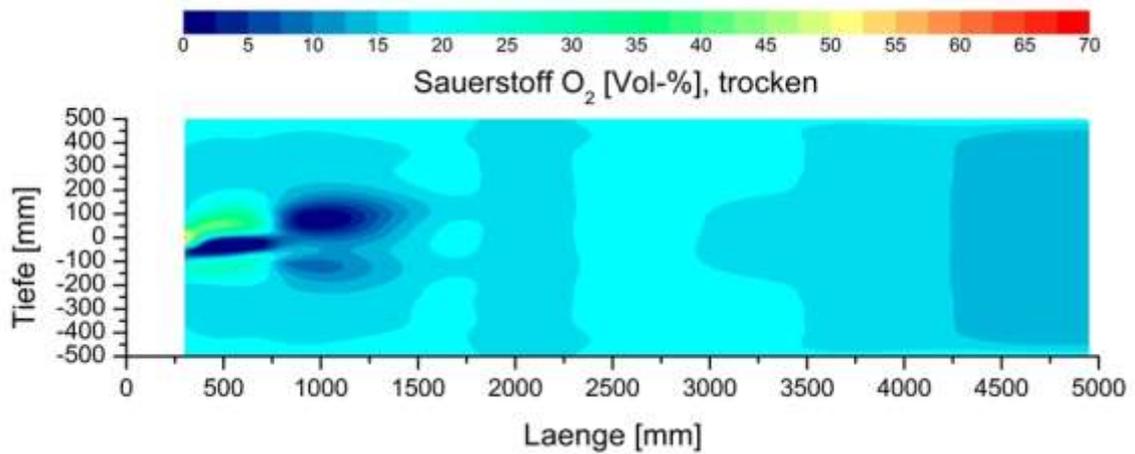


Bild 64: Gemessene O₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammerebene für Brenner 2

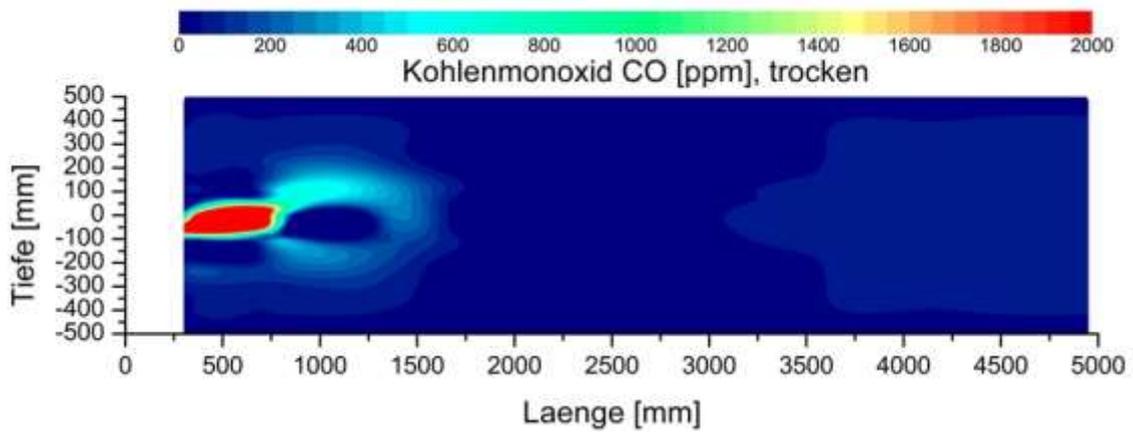
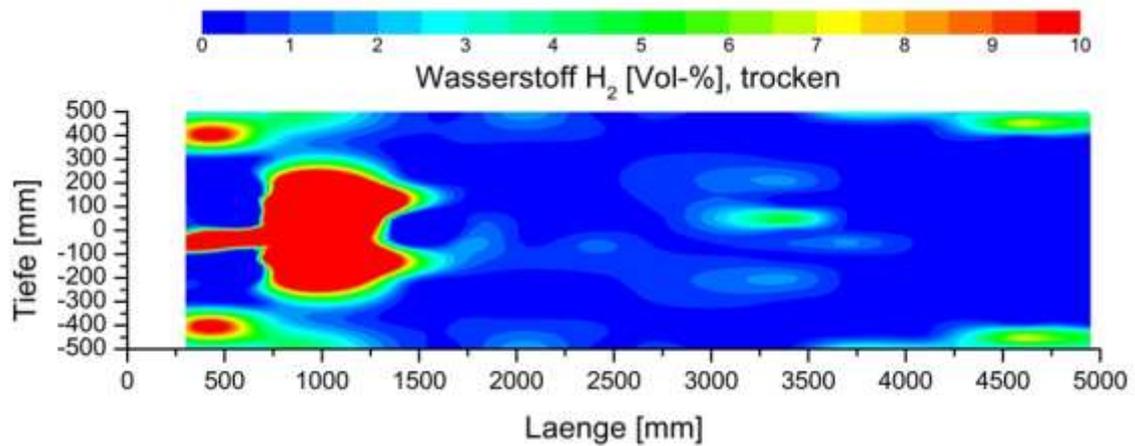


Bild 65: Gemessene CO-Verteilung in der horizontalen Brennkammerebene für Brenner 2

Bild 66: Gemessene H₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammerebene für Brenner 2

Die Verteilungen der Spezies CO und H₂, im Kontext der Oxy-Fuel-Verbrennung Zwischen-spezies, die in der Reaktionszone gebildet und auch weitestgehend wieder abgebaut werden, weisen für Brenner 2 auf eine kurze und kompakte Reaktionszone hin. In Anbetracht der großen Falschlufmengen ist allerdings sehr fraglich, inwieweit diese Messung für den normalen Betrieb des Brenners repräsentativ ist.

Auch anhand der mit Thermoelementen im Ofenraum gemessenen Temperaturverteilung ist der erhebliche Falschluffanteil erkennbar. Die adiabate Flammentemperatur einer H-Gas-Verbrennung mit reinem Sauerstoff bei 12 %-igen O₂-Überschuss liegt bei mehr als 2.700 °C. Im normalen Messbetrieb wird der Prüfstand in der Regel so betrieben, dass die Wandtemperaturen nicht über 1.600 °C ansteigen. Davon sind die gemessenen Temperaturen weit entfernt. Die gestrichelten Linien in **Bild 67** zeigen die Positionen, wo mit dem CARS-Verfahren Temperaturprofile aufgezeichnet wurden.

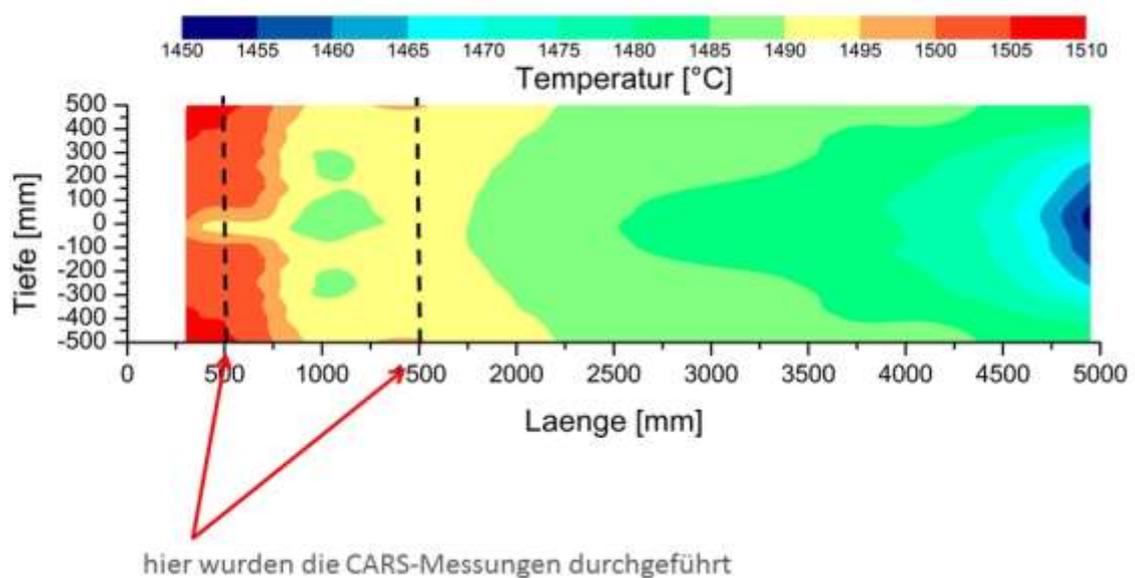


Bild 67: Gemessene Temperaturverteilung in der horizontalen Brennkammerebene für Brenner 2

Als Ursache für die massiven Falschlufteinbrüche wurden vor der Messkampagne durchgeführte Umbaumaßnahmen identifiziert, die unerwarteter Weise dazu führten, dass im Ofenraum kein Überdruck aufgebaut werden konnte. Dadurch wurde Falschluff in unbekannter Menge durch Undichtigkeiten in der Ofenwand in die Brennkammer gesogen, was diese Feldmessungen für die Validierung der CFD-Simulationen ungeeignet macht, da die Randbedingungen nicht mehr genau spezifiziert werden können.

Für die Vibrations-CARS-Messungen, die im Rahmen dieser ersten Messkampagne ebenfalls durchgeführt wurden, war diese erste Messreihe hingegen ausgesprochen hilf- und lehrreich, da hier auf einem mittleren Temperaturniveau erste Betriebserfahrungen zu CARS-Messungen an einer großen Industrieofengeometrie mit turbulenten Flammen gemacht werden konnten.

Für die detaillierten Vibrations-CARS-Feldmessungen am Versuchsstand des Gas- und Wärme-Instituts wurde eine Laserenergie des Nd:YAG Lasers von etwa 25 mJ sowie etwa 10 mJ des Farbstofflasers im Messvolumen verwendet. Die zentrale Wellenlänge des Farbstofflasers lag bei 580 nm und die Halbwertsbreite betrug 200 cm^{-1} . Die Pulsdauer beider Laser ergab sich zu 8 ns und die Wiederholfrequenz zu 10 Hz.

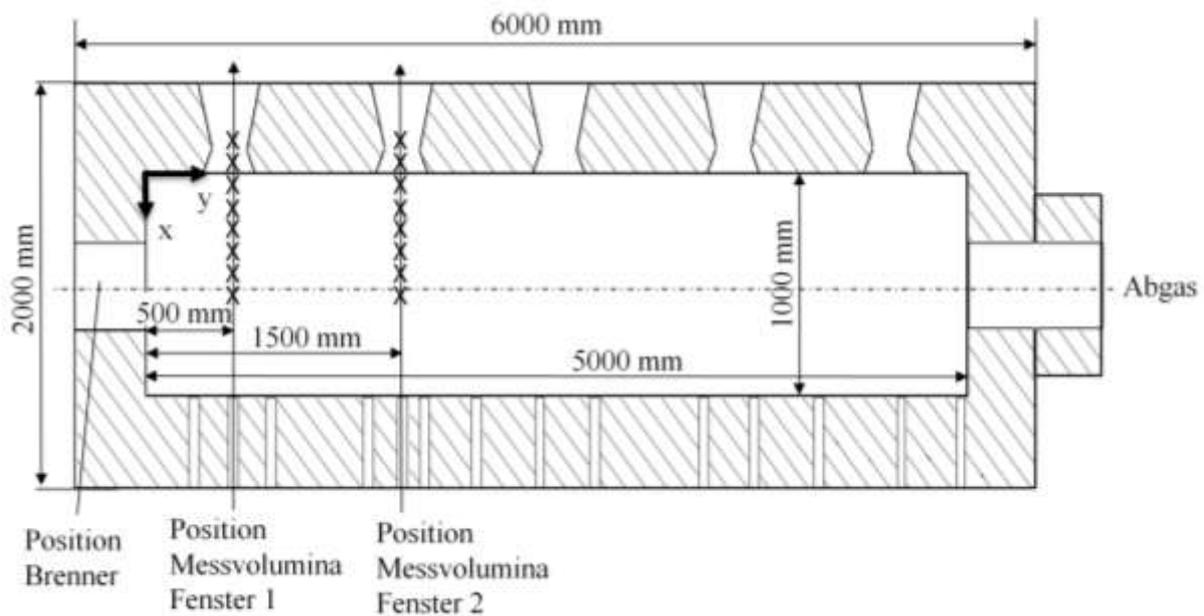


Bild 68: Schematische Darstellung der Ofengeometrie sowie die Lage der Messpositionen (x)

Die Messorte befinden sich entlang zweier Linien, wobei sich eine 500 mm und eine 1500 mm stromabwärts der Brenneröffnung befindet (siehe **Bild 67**). Aufgrund von Achsensymmetrie wird nur eine Hälfte des Verbrennungsraums vermessen. Die Messpunkte haben einen Abstand von 40 mm und sind in **Bild 68** in eine schematische Skizze der Brennkammer eingezeichnet.

Beispielhaft sind einige Messergebnisse für Brenner 2, an der Position Fenster zwei, 1500 mm stromabwärts der Brenneröffnung, in **Bild 69** dargestellt. Die Messpunkte $x = -50$ und $x = -10$ sind im Bereich der Wand aufgenommen. Hier betrug die gemessene mittlere

Temperatur ca. 1000 K. Die höchste mittlere Temperatur wurde an der Position $x = 270$ mm gemessen. Die Temperatur nimmt zum Zentrum des Brennraums hin wieder ab. Bei $x = 510$ mm wurde eine Temperatur von 1293 K gemessen. Offensichtlich ist die Flamme leicht zu einer Seite geneigt. Dies wird durch die Standardabweichung bestätigt. Weiterhin bleibt festzustellen, dass Temperaturen in der Nähe der adiabaten Flammentemperatur nicht erreicht wurden. Der Grund dafür liegt in der bereits erwähnten zusätzlichen Falschlufft, die durch einen Unterdruck von $-0,08$ mbar im Ofenraum im Vergleich zur Umgebungsdruck angesogen wurde.

Temperaturprofil Fenster 2 – Brenner 2

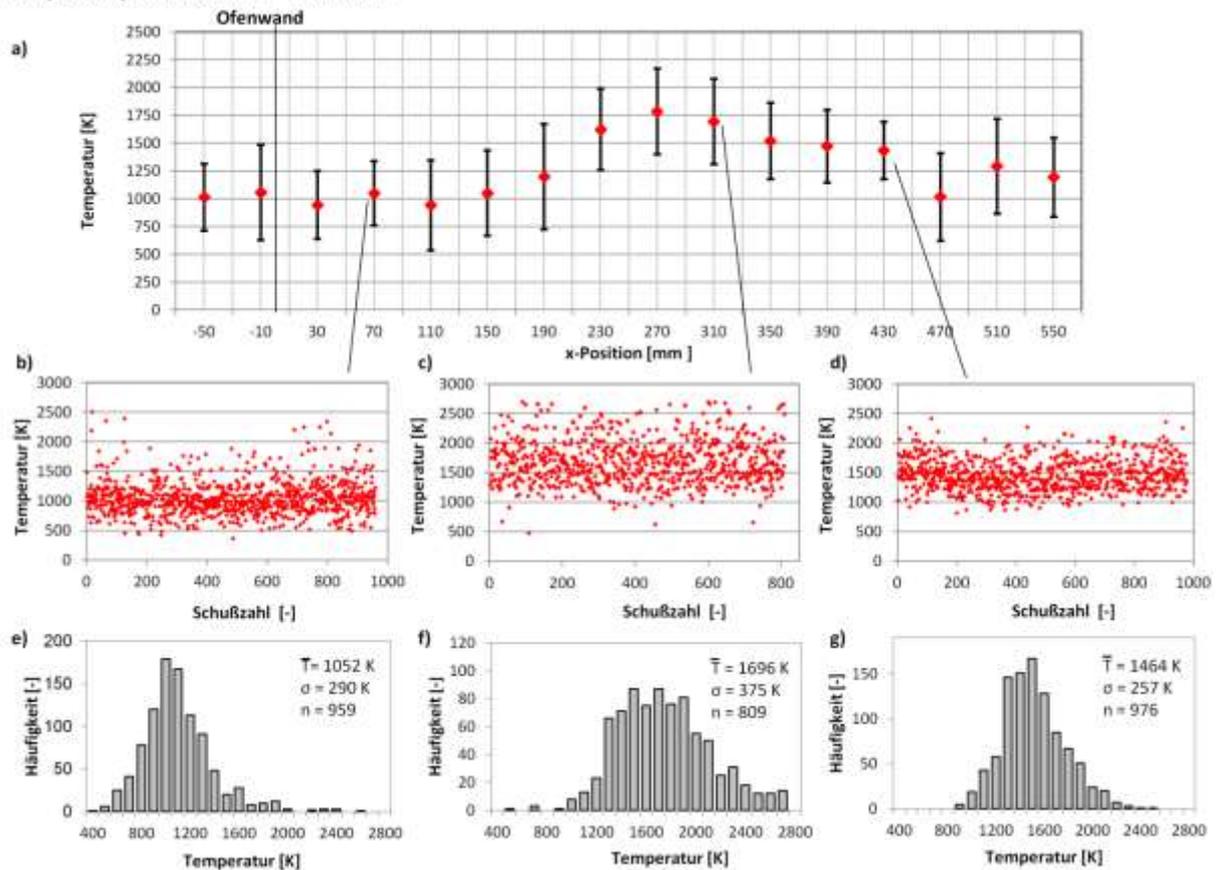


Bild 69: Ergebnisse der Untersuchungen für Brenner 2 an der Position Fenster 2

a) Temperaturprofil 1500 mm stromabwärts der Brenneröffnung aufgenommen

b - d) Zeitlicher Verlauf der Einzelpulse für ausgewählte Messpositionen

e g) Häufigkeitsverteilung der Temperaturmesswerte an denselben Messpositionen

(Quelle: Universität Siegen)

In **Bild 69 b - d** sind beispielhaft für drei Messpunkte die zeitliche Abfolge der Einzelpulsmessungen aufgetragen, sowie in **Bild 69 e - g** die dazugehörigen Häufigkeitsverteilungen. Aufgrund der Turbulenz im Brennraum ist eine deutliche Schuss zu Schuss Variation der Temperatur zu beobachten und daraus resultierend auch eine hohe Standardabweichung. Nur ein sehr geringer Teil der Standardabweichung ist auf das Messsystem zurückzuführen.

Es wurden sowohl 1500 mm als auch 500 mm stromabwärts der Brenneröffnung Temperaturprofile aufgenommen. Aufgrund des Falschluffteintrages wurde auf die Darstellung der

500 mm Ergebnisse verzichtet. Die Messungen haben die grundsätzliche Nutzbarkeit der CARS-Messtechnik für diese Oxy-Fuel-Flammen gezeigt. Der Vergleich der CARS-Ergebnisse mit Thermoelement-Messungen (die aufgrund des verhältnismäßig niedrigen Temperaturniveaus durchgeführt werden konnten) bestätigt dies.

7.5 Zweite Messkampagne am GWI-Hochtemperatur-Brennerprüfstand, Dezember 2014

Da die Messungen der ersten Messkampagne (Brenner 2) aufgrund des Falschlufteintrages als Grundlage für die Modellierung nur wenig geeignet waren, wurde entgegen dem ursprünglichen Projektplan eine zweite Messphase am Prüfstand in Essen im Dezember 2014 durchgeführt, in der Brenner 1 vermessen wurde. Im Vorfeld waren Reparaturarbeiten am Prüfstand durchgeführt worden, im Anschluss an die Reparaturen wurde durch Testläufe sichergestellt, dass der Prüfstand im Überdruck (0,12 mbar) betrieben werden konnte. Es wurde der gleiche Betriebspunkt gefahren wie bei der ersten Messkampagne, d. h. Brennerleistung 400 kW und $\lambda = 1,12$.

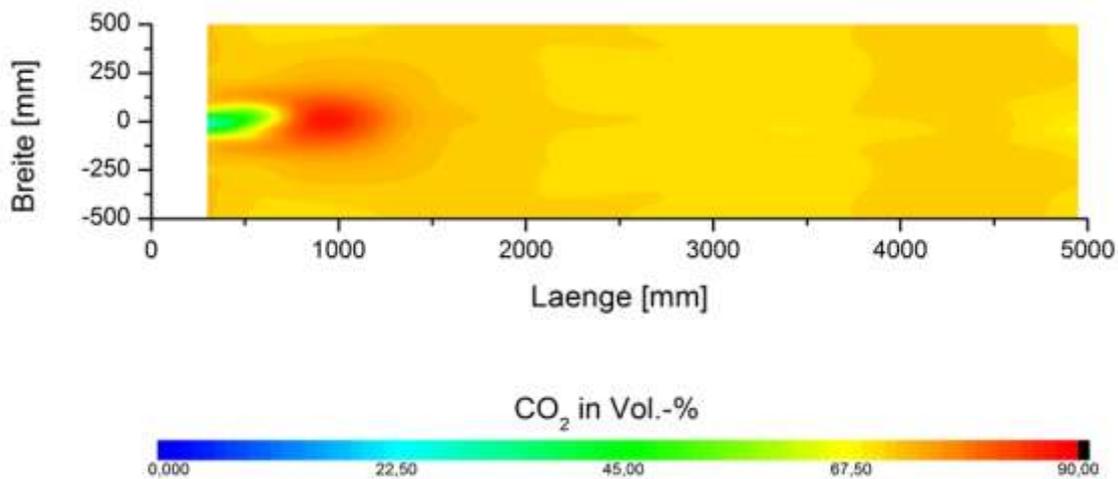


Bild 70: Gemessene CO₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammermittelebene für Brenner 1

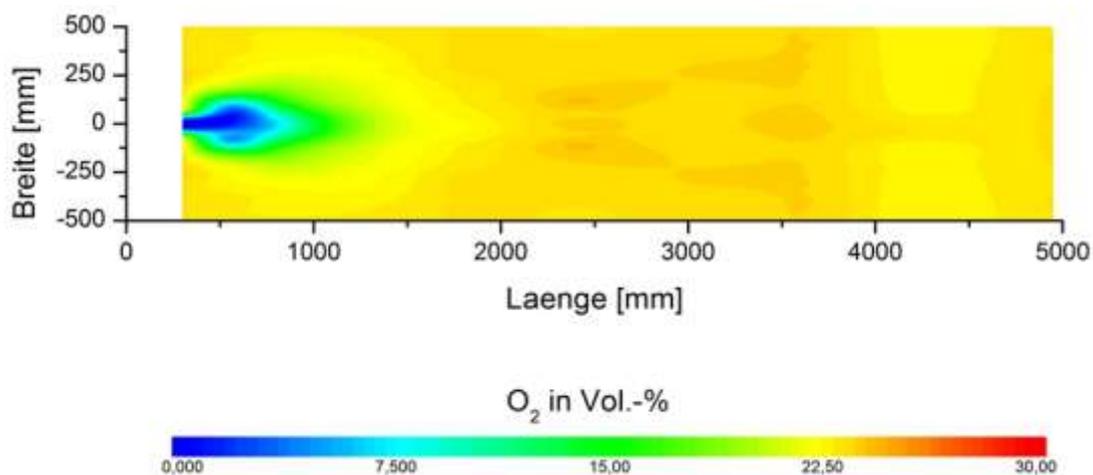


Bild 13: Gemessene O₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammermittelebene für Brenner 1

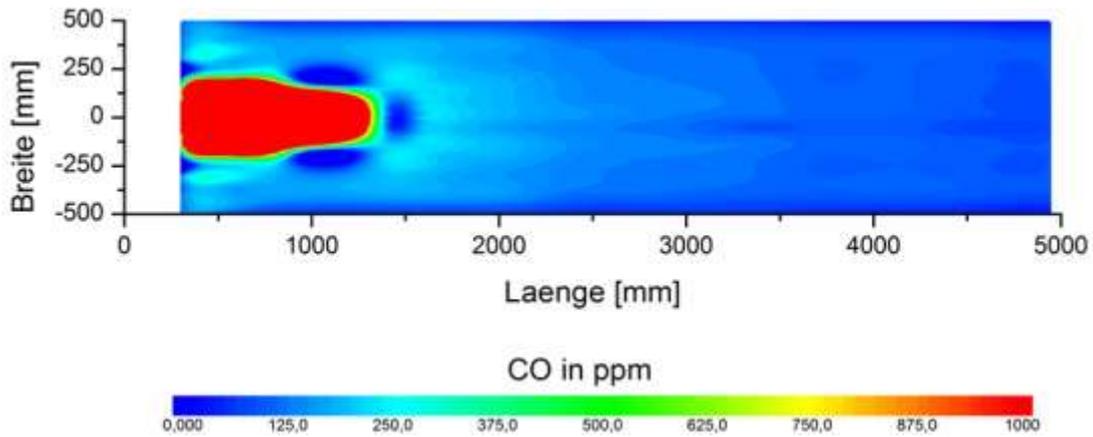


Bild 72: Gemessene CO-Verteilung in der horizontalen Brennkammermittelebene für Brenner 1

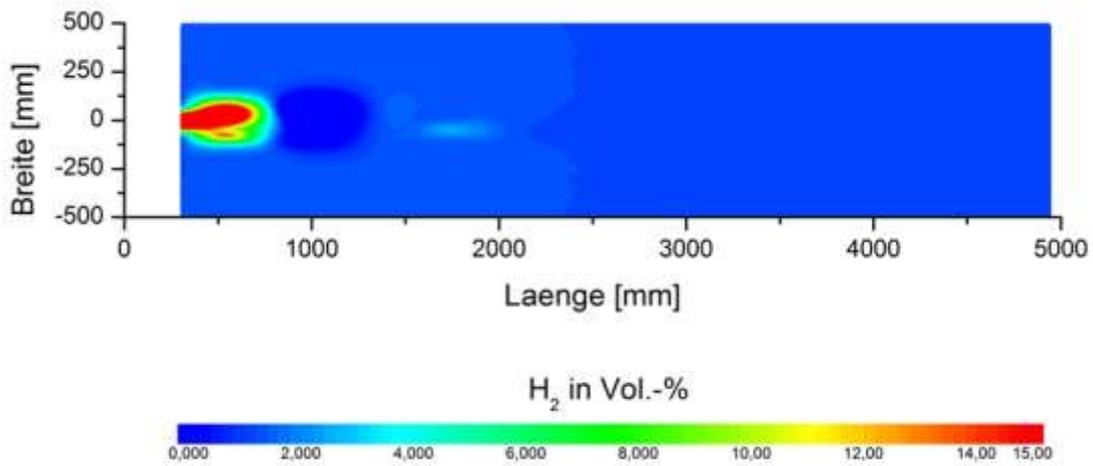


Bild 73: Gemessene H₂-Verteilung in der horizontalen Brennkammermittelebene für Brenner 1

Die **Bilder 70 - 73** zeigen die Ergebnisse der Feldmessungen der (trockenen) Speziesverteilungen für CO₂, O₂, CO und H₂ in der horizontalen Mittelebene der Brennkammer. Aufgrund der hohen Temperaturen wurde auf eine Temperaturmessung mit Thermoelementen verzichtet.

Es wird deutlich, dass bei diesen Messungen der geplante Oxy-Fuel-Betrieb erreicht wurde. Der Brenner selbst ist durch eine recht homogene Verteilung der Spezies, außer in unmittelbarer Nähe des Brennermundes, charakterisiert.

Bei Brenner 1 handelt es sich um einen Hochimpuls-Oxy-Fuel-Brenner, bei dem durch eine Oxidatorstufung zwei Reaktionszonen erreicht werden sollen. In der ersten Reaktionszone findet eine stark unterstöchiometrische Verbrennung statt, in der nachgeschalteten sekundären Reaktionszone erfolgt dann die vollständige Umsetzung des Brenngases. Diese Verbrennungsführung hat zwei Vorteile: zum einen bildet sich aufgrund der unterstöchiometrischen Verbrennung in der Primärzone eine stark leuchtende Flamme, mit entsprechend guter Wärmeübertragung, zum zweiten kann durch die Oxidatorstufung die thermische NO_x-Bildung erheblich reduziert werden. Die hohen Strahlgeschwindigkeiten, die zu einem erheblichen „entrainment“ von heißer, aber chemisch inerte Ofenraumatmosfera im Strahl führen, verdünnen zudem die zweite Reaktionszone, wodurch die Stickoxid-Bildung zusätzlich reduziert werden soll.

Im Vorfeld der Messkampagne war der Brenner jedoch dahingehend modifiziert worden, dass die Düsenquerschnitte reduziert wurden, um noch höhere Strahlgeschwindigkeiten bis hin zur Schallgeschwindigkeit in den O₂-Düsen zu erreichen. Dies wurde durch eine Fehlkommunikation erst nach den Messungen bekannt, hatte aber zur Folge, dass die Speziesmessungen kaum zur Validierung der CFD-Reaktionsmodelle geeignet sind. Zum einen basieren sowohl das vom GWI verwendete nicht-adiabate PDF-Gleichgewichts-Modell als auch die im Rahmen des Projekts entwickelten Flamelet-Formulierungen implizit auf der Annahme einer inkompressiblen Strömung ($Ma < 0,3$), d. h. Änderungen in der Dichte ergeben sich ausschließlich aufgrund von Änderungen in lokaler Temperatur und Fluidzusammensetzung. Dies war im vorliegenden Fall jedoch nicht mehr gegeben. Zum zweiten ergab sich durch die verengten Düsenquerschnitte das Problem, dass gar nicht mehr genau bestimmt werden konnte, welcher Anteil des Oxidators in die primäre Reaktionszone eingebracht wurde und wie viel Oxidator in die sekundäre Reaktionszone strömte. Durch Versperrungen in den Düsen konnten somit die jeweiligen Massenströme nicht mehr belastbar bestimmt werden, so dass dringend notwendige Randbedingungen für die Simulation fehlten. Nach Rücksprache mit den Projektpartnern wurde daher beschlossen, die Bemühungen zur Validierung der Reaktionsmodelle auf die Untersuchungen der IFRF und die Messungen aus dem vorangegangenen AiF-Projekt „O₂-Glaswanne“ zu konzentrieren.

Dennoch wurden seitens der Universität Duisburg-Essen eine Reihe von Simulationen für dieses Experiment durchgeführt, sowohl mit der ursprünglichen Geometrie des Brenners 1, als auch mit der letztendlich vermessenen Geometrie. Aus den genannten Gründen sollten diese Simulationen nicht zur Validierung des entwickelten Modellansatzes genutzt werden, geben aber bereits einen Einblick in die Leistungsfähigkeit des entwickelten Flamelet-Modells.

Eine Frage, die gerade in Hinsicht auf die CARS-Messungen von Interesse ist, ist, inwieweit Auftriebseffekte bei einer solchen Flamme eine Rolle spielen können. In den **Bildern 74 – 76** sind die Auswirkungen des Auftriebs auf die Verteilung von Axialgeschwindigkeit, Temperatur und O₂-Konzentration dargestellt. Der Vergleich der beiden Simulationen (mit und ohne Auftrieb) zeigt deutlich, dass die Außerachtlassung der Auftriebseffekte zu Abweichungen bei der Validierung punktueller Messdaten wie etwa CARS-Verfahren führen kann.

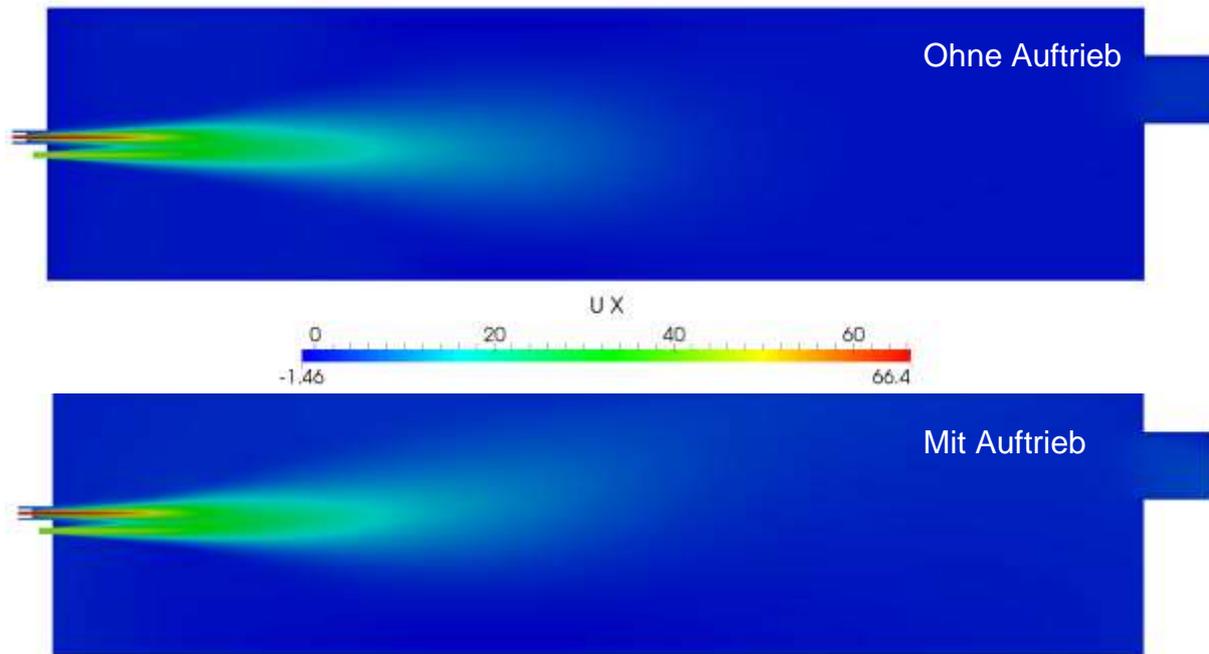


Bild 74: Auswirkung von Auftriebseffekten auf die Geschwindigkeitsverteilung in der vertikalen Mittelebene, berechnet für die ursprüngliche Brennergeometrie von Brenner 1

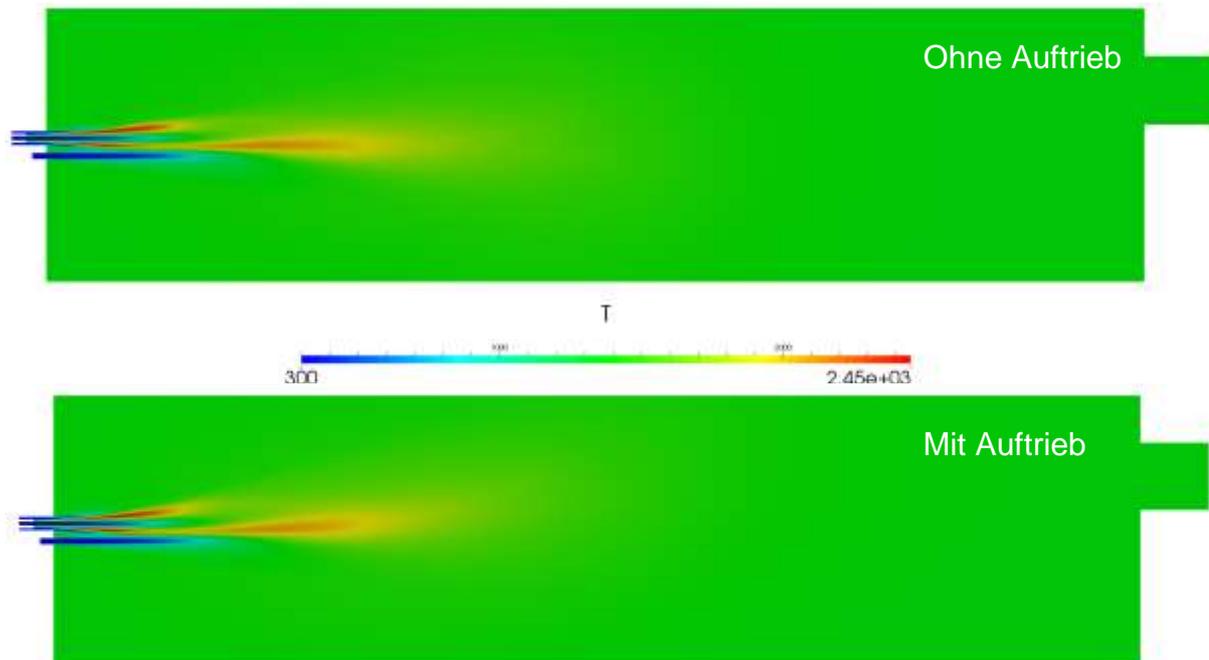


Bild 75: Auswirkung von Auftriebseffekten auf die Temperaturverteilung in der vertikalen Mittelebene, berechnet für die ursprüngliche Brennergeometrie von Brenner 1

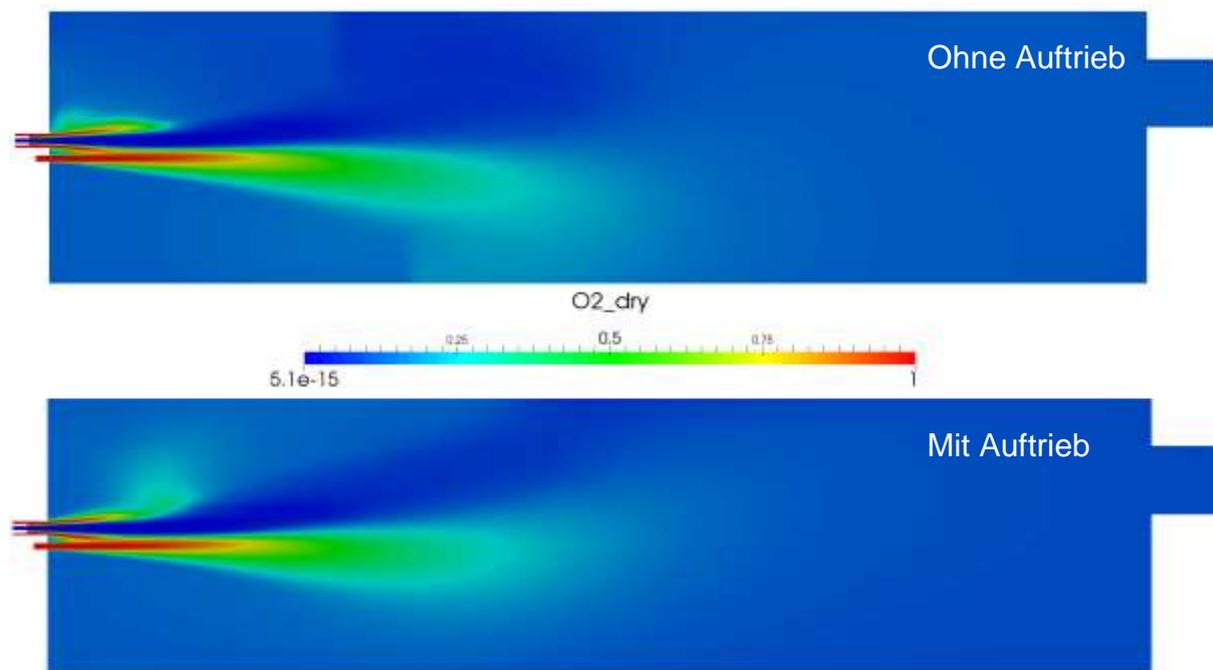


Bild 76: Auswirkung von Auftriebseffekten auf die O₂-Verteilung in der vertikalen Mittelebene, berechnet für die ursprüngliche Brennergeometrie von Brenner 1

Wie erwähnt, wurde der tatsächlich vermessene Brenner vor dem Einbau in den Brennerprüfstand durch den Brennerhersteller erheblich modifiziert. Insbesondere wurden die Düsendurchmesser verringert, so dass sich in einer Sauerstofflanze eine Strömung im schallnahen Bereich etablierte. Dies hatte zur Folge, dass sich durch Versperrungseffekte die Massenstromverteilung von Primär- und Sekundärsauerstoff (es handelt sich um einen Brenner mit Oxidatorstufung) erheblich verschoben. Generell lagen derart hohe Geschwindigkeiten im Brennernahbereich vor, dass eine inkompressible Strömung (eine Voraussetzung für mischungsbruchbasierte Reaktionsmodelle wie PDF-Gleichgewicht oder Flamelet) nicht mehr gegeben war.

Um die Grenzen des entwickelten Modells zu testen, nahm sich ein Projektpartner dennoch vor, den im Dezember 2014 vermessenen Brenner 1 zu simulieren. Da der verwendete Brenner stark modifiziert wurde, waren die Randbedingungen, wie die Massenströme und Impulse, unbekannt. Um diese qualitativ bestimmen zu können, führte die Duisburger Gruppe eine aufwändige Simulation der hochkompressiblen Strömung innerhalb des Brenners durch. Hierfür wurde das Fluidvolumen des modifizierten Brenners mit einem 3D-CAD Modell rekonstruiert und anschließend komplett mit Hexaederelementen vernetzt. Die Randbedingungen wurden dem Messprotokoll des GWI entnommen. Für diese Simulation wurde ein dichtebasierter, voll kompressibler und nicht-reaktiver Löser verwendet. Aus Gründen der Geheimhaltung können die Simulationsergebnisse aus dem Inneren des Brenners jedoch nicht in diesem Bericht veröffentlicht werden.

Die nun bekannten Gasströme - die erheblich von denen der Auslegungsvariante abweichen - konnten als Randbedingungen eine Simulation des am GWI vermessenen Falls verwendet werden. Da diese Randbedingungen mit einer gewissen Unsicherheit verbunden sind und

aufgrund der Kompressibilität der Strömung kann diese Rechnung jedoch lediglich als ein Beleg für die qualitative Leistungsfähigkeit des Reaktionsmodells dienen. Zur Validierung sollten eher die IFRF-Untersuchungen herangezogen werden.

Um den besagten Fall berechnen zu können, musste der Projektpartner noch zusätzliche Änderungen am entwickelten Löser vornehmen. Beispielsweise wurde ein anderes Druckkorrekturverfahren implementiert, welches stabiler mit großen Druckänderungen umgehen kann. Bei diesem Verfahren wird die transportierte Dichte von der thermodynamischen Dichte getrennt betrachtet und mittels der Idealgasgleichung und den in den Flamelettabellen enthaltenen thermodynamischen Größen korrigiert. Die nachfolgenden Abbildungen und Diagramme zeigen die Lösungen dieser Simulation in 3D und als 2D-Schnittebenen.

Bild 77 zeigt eine dreidimensionale Darstellung des Temperaturfeldes im Brennraum, wobei lediglich die Bereiche mit lokalen Temperaturen über 1850 K dargestellt sind.

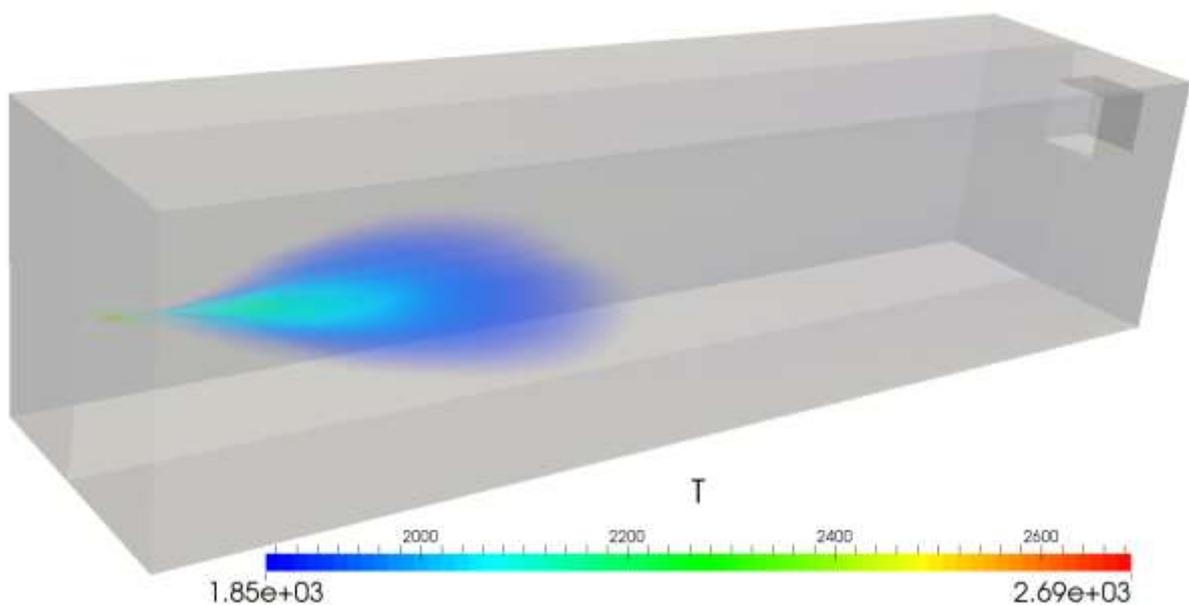


Bild 77: Dreidimensionale Darstellung der Temperatur im Rechengebiet [K]. Der Temperaturbereich wurde für diese Darstellung neu skaliert. Die 2D-Schnittebene der nachfolgenden Abbildungen ist leicht hervorgehoben.

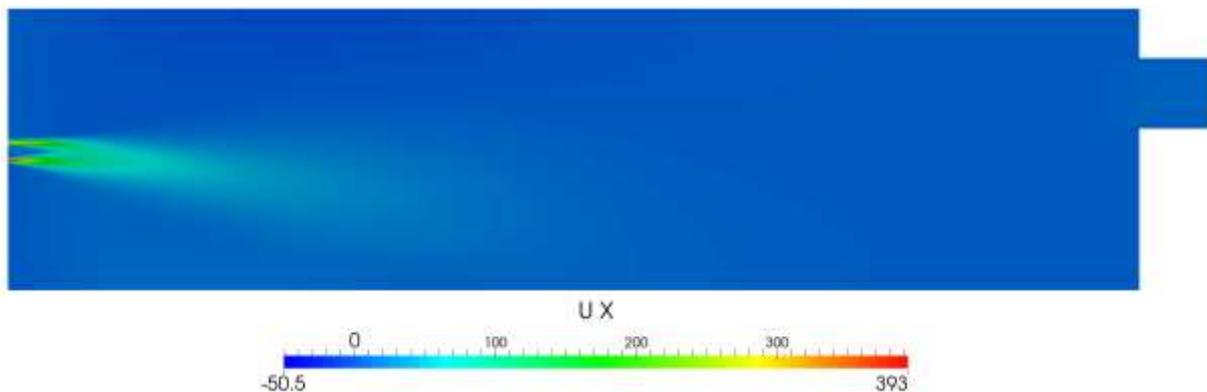


Bild 78: Axialgeschwindigkeitsverteilung für den vermessenen Brenner 1 in der vertikalen Mittelebene

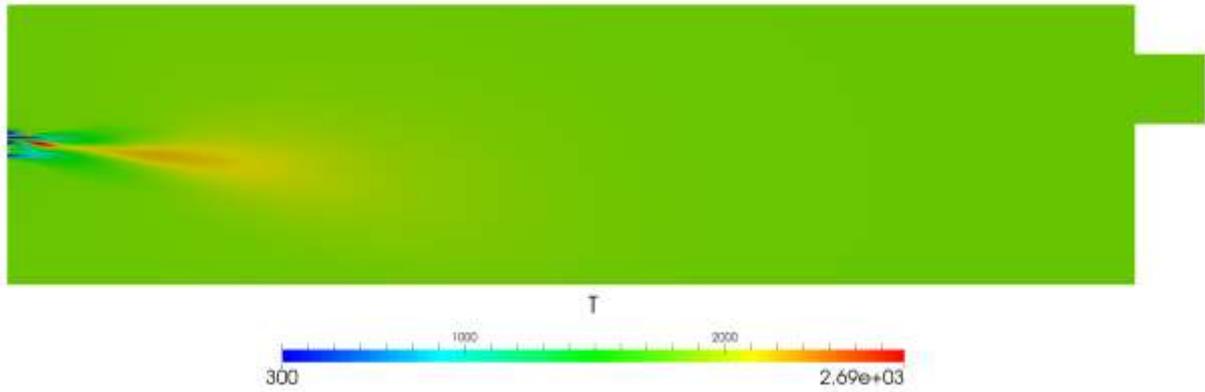


Bild 79: Temperaturverteilung für den vermessenen Brenner 1 in der vertikalen Mittelebene

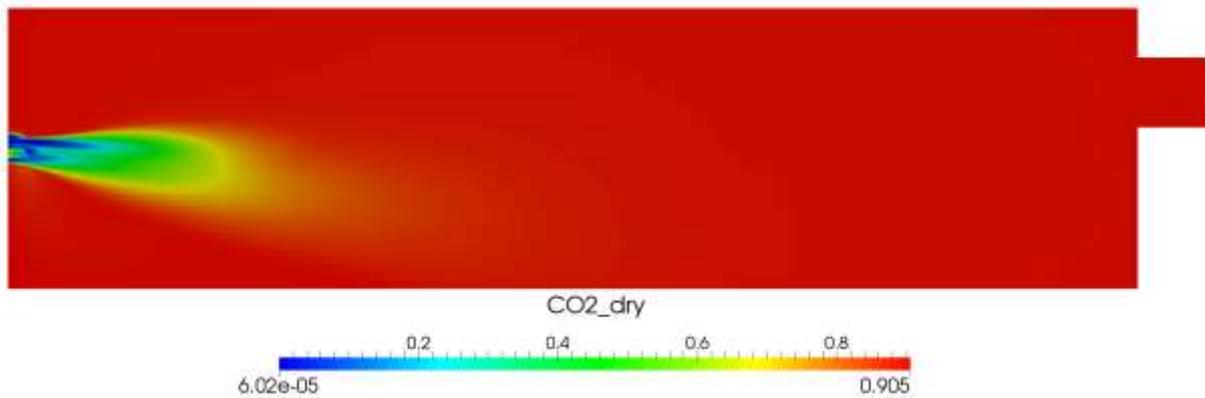


Bild 80: CO₂-Verteilung für den vermessenen Brenner 1 in der vertikalen Mittelebene

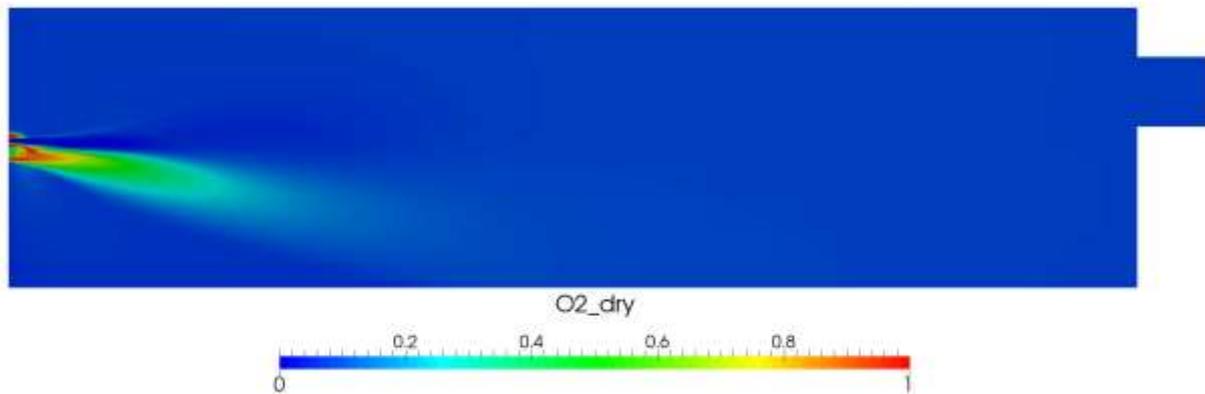


Bild 81: O₂-Verteilung für den vermessenen Brenner 1 in der vertikalen Mittelebene

Die **Bilder 78- 81** zeigen Axialgeschwindigkeits-, Temperatur-, CO₂- und O₂-Verteilungen in der vertikalen Mittelebene, die sich aus den Simulationen ergeben. Ähnlich wie bei den Messungen zeigt sich auch in der Simulation, dass sich aufgrund der hohen Strömungsimpulse sehr homogene Verteilungen der Größen, außer in unmittelbarer Nähe des Brenners, ergeben.

Ein Vorteil, den CFD-Simulationen bei Brenneruntersuchungen mit sich bringen, ist ihre, verglichen mit der Messtechnik, extrem hohe räumliche Auflösung. Anhand der Simulationen, die quasi ein idealisiertes Abbild der Realität wiedergeben, kann somit z.B. auch dargestellt

werden, wie sensibel Messergebnisse auf relativ geringe räumliche Abweichungen reagieren können.

Bild 82 zeigt den Vergleich mit der CARS-Messung: bei einer Abweichung von 1 cm von der anvisierten Messebene stellt sich bereits eine Temperaturdifferenz von 100 K ein. Die Brennerdüsen, welche ebenfalls simuliert wurden, wurden aus Gründen der Geheimhaltung aus den Darstellungen entfernt.

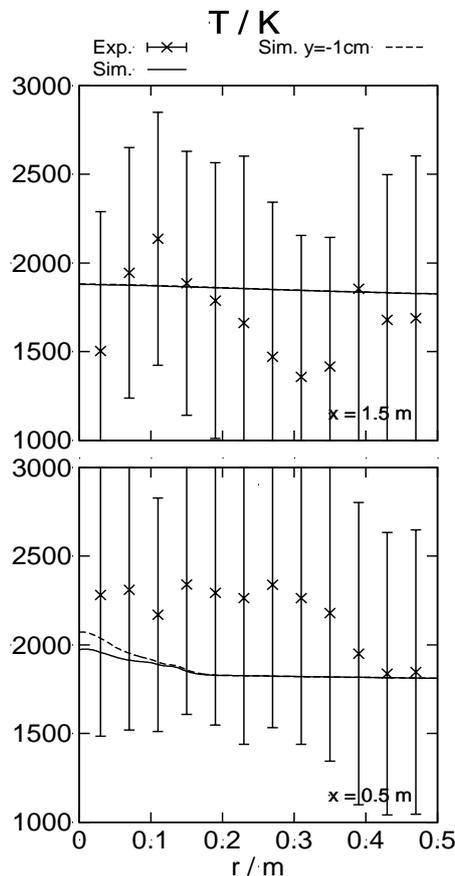


Bild 82: Vergleich der Temperaturdaten der CARS-Messung und der Simulation an den beiden axialen Positionen ($x=0.5$ m und $x=1.5$ m). X-Achse entspricht dem radialen Abstand ausgehend vom Mittelpunkt des Brennerquerschnittes. Gestrichelte Linie zeigt die Temperatur bei einer vertikalen Verschiebung der Messebene um 0.01 m. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichungen, die bei der Aufnahme eines Messpunktes auftraten.

Die CARS-Messungen konnten für Brenner 1 hingegen erfolgreich durchgeführt werden und demonstrieren die Anwendbarkeit des CARS-Verfahrens auch und gerade im Bereich der Hochtemperatur-Thermoprozesstechnik.

Für Brenner 1 sind einige Messergebnisse, 500 mm von der Brenneröffnung entfernt aufgenommen, beispielhaft in **Bild 83** dargestellt. Ein Bereich hoher Temperatur ist im Zentrum des Brennraums deutlich erkennbar. Die mittlere Temperatur beträgt hier ca. 2260 K. Zum Wandbereich hin fällt die mittlere Temperatur ab und erreicht einen Wert von ca. 1750 K. Die mittleren Temperaturen sind nun deutlich höher als in der ersten Feldmessungen und liegen nun in einem Temperaturbereich, der für solche Oxy-Fuel Verbrennungen zu erwarten ist.

Im Vergleich zu Brenner 2 (vgl. **Bild 69**) zeigt sich darüber hinaus eine höhere Standardabweichung. Das hat vermutlich zwei Ursachen. So unterscheiden sich die beiden zum Einsatz gekommenen Brenner in baulicher Sicht stark, so dass auch ein Unterschied bezüglich der Flammenstruktur zu erwarten ist. Da es sich bei Brenner 1 um einen Hochimpuls-Brenner handelt, liegt hier im Brennernahbereich eine weitaus stärkere Turbulenz vor. Darüber hinaus konnte in der zweiten Messphase der Eintrag von Falschluff vermieden werden. Diese hohe Standardabweichung ist typisch für turbulente Verbrennungsprozesse und wird durch die Darstellung der zeitlichen Einzelpulsmessung für drei ausgewählte Messpunkte in **Bild 83 b – d** verdeutlicht. Hier ist eine hohe Schuss-zu-Schuss-Temperaturvariation zu erkennen, die zu einer hohen Standardabweichung führt. In **Bild 83 e – g** sind die entsprechenden Häufigkeitsverteilungen aufgetragen, welche eine ansatzweise bimodale Temperaturverteilung zeigen. Diese ist charakteristisch für die Anwesenheit von abwechselnd verbranntem und unverbranntem Gas im Messvolumen, was typisch ist für den Mischungsbereich dieses Brenners.

Temperaturprofil Fenster 1 – Brenner 1

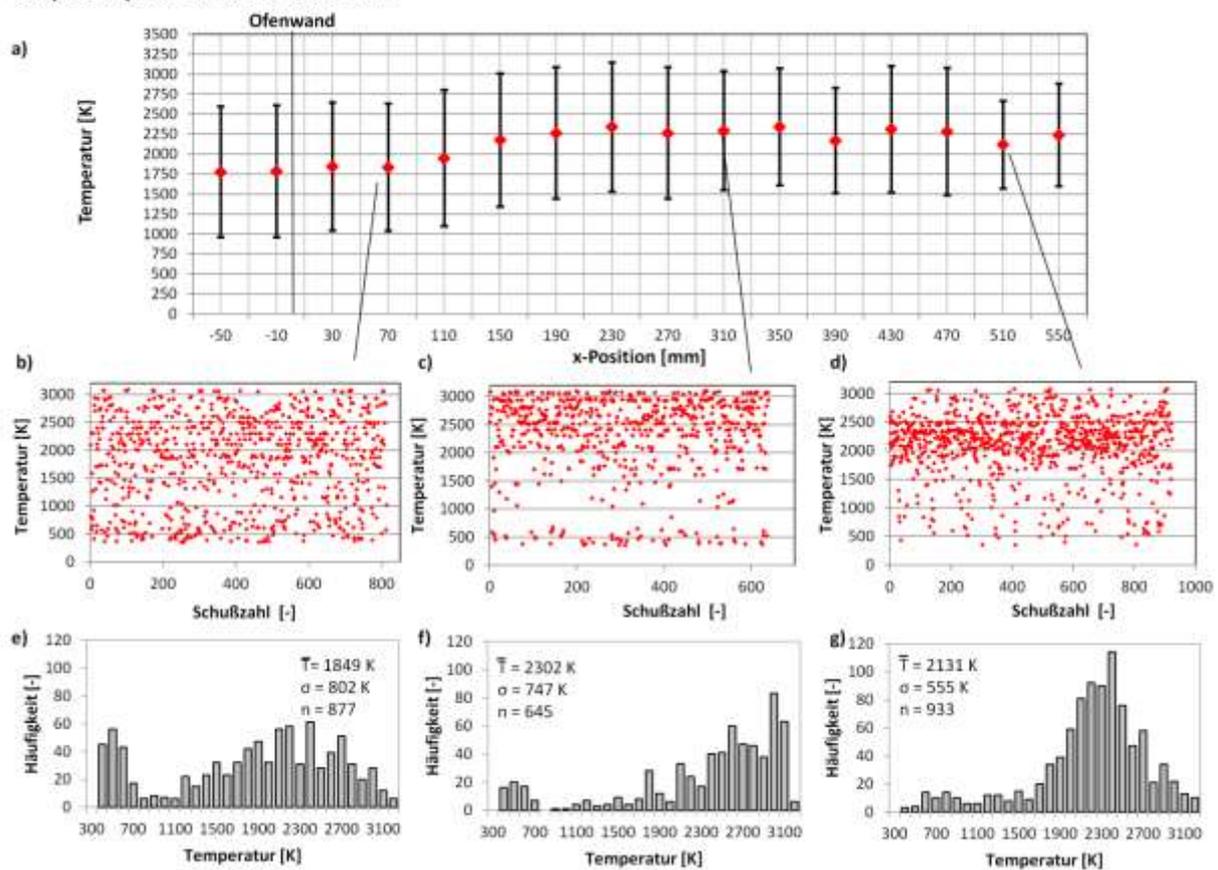


Bild 83: Ergebnisse der Untersuchungen für Brenner 1 an der Position Fenster 1

a) Temperaturprofil 500 mm stromabwärts der Brenneröffnung aufgenommen

b - d) Zeitlicher Verlauf der Einzelpulse für ausgewählte Messpositionen

e - g) Häufigkeitsverteilung der Temperaturmesswerte an denselben Messpositionen

(Quelle: Universität Siegen)

Für Brenner 1 sind auch Messungen an Fenster zwei, 1500 mm von der Brenneröffnung entfernt, aufgenommen und ausgewertet worden. Einige Ergebnisse sind in **Bild 84** dargelegt.

Hier sind im direkten Vergleich zu Brenner zwei am Fenster zwei deutlich höhere mittlere Temperaturen im Brennraum erkennbar. Die mittleren Temperaturen variieren von ca. 1330 K im Wandbereich bis hin zu ca. 2140 K im Zentrum des Brennraumes. Im Vergleich zu den Ergebnissen an Fenster eins sind die mittleren Temperaturen bereits geringfügig niedriger, was mit entsprechender Wärmeabgabe begründet werden kann. Es werden auch hier, so wie an Position Fenster eins des gleichen Brenners in Einzelschüssen Temperaturen bis zur adiabaten Flammentemperatur von 3054 K gemessen. Für ausgewählte Positionen ist der zeitliche Verlauf der Einzelpulse in **Bild 84 b – d** dargestellt, welcher die hohen Standardabweichungen aufzeigt. In **e – g** sind die korrespondierenden Häufigkeitsverteilungen abgebildet. Hier zeigt sich wie bereits an Position Fenster eins eine ansatzweise bimodale Temperaturverteilung. Somit scheint auch an dieser Position der Mischungsprozess noch nicht vollständig beendet zu sein.

Temperaturprofil Fenster 2 – Brenner 1

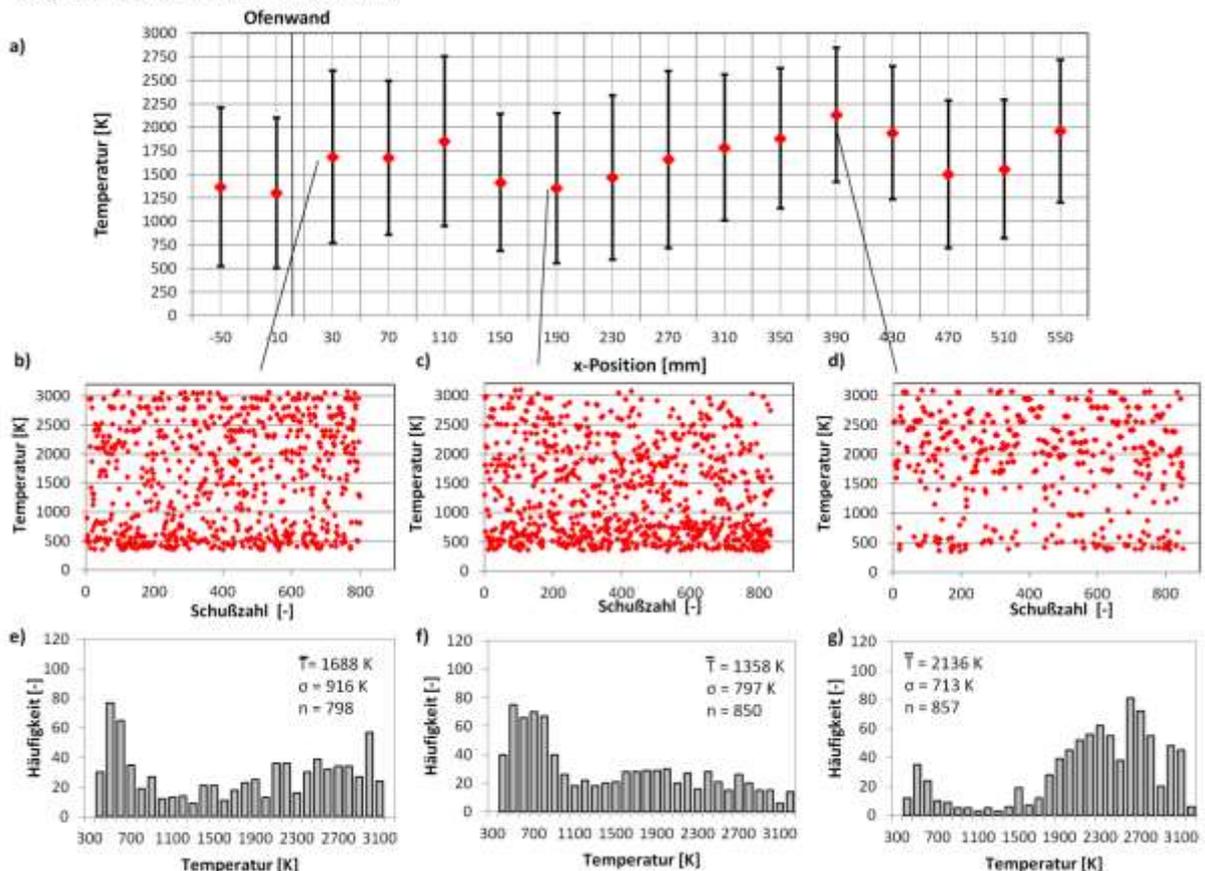


Bild 84: Ergebnisse der Untersuchungen für Brenner 1 an der Position Fenster 2

a) Temperaturprofil 1500 mm stromabwärts der Brenneröffnung aufgenommen

b - d) Zeitlicher Verlauf der Einzelpulse für ausgewählte Messpositionen

e - g) Häufigkeitsverteilung der Temperaturmesswerte an denselben Messpositionen

(Quelle: Universität Siegen)

Die CARS-Messungen an einem semi-industriellen Hochtemperatur-Prüfstand demonstrieren die Anwendbarkeit dieses Verfahrens auch jenseits des Labormaßstabs. Es konnte gezeigt werden, dass durch die Wahl geeigneter Moleküle als Signalträger auch unkonventionelle

Verbrennungskonzepte wie etwa die Oxy-Fuel-Verbrennung untersucht werden können. Durch die erstmaligen Versuche an industrienahen Geometrien und Abmessungen konnten zudem wertvolle Erfahrungen gesammelt werden, um dieses Messkonzept für die großindustrielle Anwendung weiterzuentwickeln.

Wie bereits an anderer Stelle erwähnt, konnte die eigentlich im Rahmen des Projekts geplante finale Vermessung und Simulation einer Industrieofenanlage nicht realisiert werden, da für das geplante Zeitfenster keine geeignete Anlage zu finden war.

8. Ausblick und offene Fragen

Im Rahmen des Forschungsvorhabens „O₂-HTVT“ konnten beträchtliche Fortschritte im Bereich der Modellierung, aber auch der detaillierten Vermessung von (semi-)industriellen Oxy-Fuel-Feuerungsprozessen erreicht werden. Dennoch bleiben Fragen offen, die, auch aus Sicht der industriellen Verwendung, interessant wären:

- Ist es möglich, den entwickelten reduzierten Reaktionsmechanismus noch weiter zu reduzieren?

Im Rahmen des Projekts wurde, ausgehend vom bekannten GRI3.0-Mechanismus des Gas Research Institutes, ein reduzierter Reaktionsmechanismus mit 17 Spezies und 12 Reaktionsgleichungen entwickelt. Zwar konnte demonstriert werden, dass dieser Mechanismus die wesentlichen Charakteristika der Oxy-Fuel-Verbrennung bei vergleichbaren Ergebnissen erheblich effizienter darstellen kann als der GRI3.0, für eine Anwendung mit einem Eddy-Dissipation Concept im Rahmen von industriellen CFD-Simulationen erscheint dieser Mechanismus aber nach wie vor zu umfangreich. Auch zum Beispiel in der Glas-Industrie gebräuchliche, branchenspezifische CFD-Anwendungen wie etwa GTM-X [97] oder der CFD-Code von Glass Services [98], [99] sind nicht wirklich darauf ausgelegt, umfangreiche Reaktionsmechanismen für die Verbrennungsmodellierung zu verwenden, da das Hauptaugenmerk bei diesen CFD-Codes auf den Prozessen im Glasbad liegt. Bei der Methan-Luft-Verbrennung sind Mechanismen wie Westbrook-Dryer [30] oder Jones-Lindstedt [31] mit 6 Spezies und 2 Reaktionsgleichungen bzw. 7 Spezies und 4 Reaktionsgleichungen industrielle Praxis. Gleichzeitig konnte gezeigt werden, dass diese Mechanismen für die Modellierung der Oxy-Fuel-Verbrennung nur mit erheblichen Einschränkungen geeignet sind. Hier wären weitere Forschungsaktivitäten sicherlich wünschenswert.

- Inwieweit sind typische Strahlungswärmeübertragungsmodelle für Oxy-Fuel-Feuerungsprozesse geeignet?

Oxy-Fuel-Brenner kommen naturgemäß in der Regel bei Hochtemperatur-Prozessen zum Einsatz, in denen die Wärmeübertragung durch Strahlung den dominanten Wärmeübertragungsmechanismus darstellt. Typische Verbrennungsmodelle in CFD-

Anwendungen wurden aber, ähnlich wie viele Verbrennungsmodelle, für die „klassische“ Verbrennung mit dem Oxidator Luft entwickelt. Da bei der Oxy-Fuel-Feuerung das Rauchgas im Wesentlichen aus den strahlungsaktiven drei-atomigen Spezies CO_2 und H_2O besteht, ist fraglich, inwieweit es durch Modellannahmen hier zu Fehlern kommen kann.

- Wie kann die Einbindung der im Rahmen des Projekts entwickelten nicht-adiabaten Oxy-Fuel-Flamelets in kommerzielle CFD-Codes vereinfacht werden?
Die in O2-HTVT entwickelten Ansätze zur Modellierung der Oxy-Fuel-Verbrennung mit Hilfe von nicht-adiabaten Flamelets haben sich als ausgesprochen vielversprechender Kompromiss zwischen Detailgrad der Beschreibung der chemischen Prozesse und numerischem Aufwand erwiesen, wie durch die OpenFOAM-Simulationen der Universität Duisburg-Essen gezeigt werden konnte. Ein Problem stellt jedoch im Moment noch die Einbindung von selbst-generierten Flamelets in kommerzielle CFD-Codes dar, da die entsprechenden Interfaces kaum dokumentiert sind. Hier wäre die Zusammenarbeit mit den Software-Häusern (etwa ANSYS) wünschenswert. Bei der Vorbereitung des Projekts ist ANSYS auf eine Mitarbeit hin angesprochen worden, hatte aber damals kein Interesse signalisiert.
- Wie kann die Vibrations-CARS-Temperaturmesstechnik „industrietauglicher“ gemacht werden?
Das O2-HTVT-Projekt hat den Nutzen der nicht-invasiven CARS-Lasermesstechnik zur Temperaturmessung in (semi-)industriellen Hochtemperaturanlagen demonstriert. Für die Anwendung in der industriellen Praxis sind aber Weiterentwicklungen durchzuführen, zum Beispiel im Hinblick auf die Robustheit.

Gegenüberstellung von Forschungszielen und erzielten Ergebnissen

Forschungsziel	Erzieltes Ergebnis
<ul style="list-style-type: none"> • Reaktionskinetische Modellierung des Oxy-Fuel-Prozesses 	<ul style="list-style-type: none"> • Grundlegende Unterschiede zwischen der Oxy-Fuel-Verbrennung und der konventionellen Verbrennung mit Luft wurden herausgearbeitet. • Anhand einer umfangreichen Literaturrecherche und dem Vergleich mit Labormessungen wurde ein geeigneter umfangreicher Reaktionsmechanismus (GRI 3.0) für den Reduktionsprozess ermittelt • Ein reduzierter Mechanismus wurde entwickelt (17 Spezies, 12 Gleichungen)
<ul style="list-style-type: none"> • Untersuchung des nicht-adiabaten stationären Flamelet-Modells in Bezug auf seine Anwendbarkeit für die Oxy-Fuel-Verbrennung • Erweiterung der Flamelet-Formulierung für starke Wärmeverluste 	<ul style="list-style-type: none"> • Wärmeverluste spielen bei der Oxy-Fuel-Verbrennung eine weitaus stärkere Rolle als bei der konventionellen Verbrennung. Entsprechend wurden verschiedene Wege, Wärmeverlust besser in die Flamelet-Modelle zu integrieren, untersucht und bewertet • Es konnte gezeigt werden, dass Oxy-Fuel-Flammen sehr robust gegenüber Turbulenzeinflüssen ist, so dass die Streckungsrate als Flamelet-Parameter von nachrangiger Bedeutung ist • Ein Strahlungswärmeverlust-Ansatz wurde in das Flamelet-Modell integriert und getestet
<ul style="list-style-type: none"> • Erweiterung des Vibrations-CARS-Temperaturmessverfahrens für die Oxy-Fuel-Verbrennung und große Geometrien 	<ul style="list-style-type: none"> • Eine für die Vermessung großer Geometrien und hochturbulenter Strömungen geeignete CARS-Konfiguration wurde gefunden (konzentrische Strahlführung) • CO- und O₂-Moleküle wurden bzgl. ihrer Eignung als Signalquelle in der Verbrennung untersucht. Beide sind per se geeignet, allerdings erscheint das O₂-

	<p>Molekül aufgrund der höheren lokalen Konzentrationen überall im Brennraum sinnvoller.</p> <ul style="list-style-type: none"> • Die Daten zur Auswertung der Spektren aufgrund des O₂-Signals wurden in die Auswertungssoftware integriert.
<ul style="list-style-type: none"> • Detaillierte experimentelle Untersuchungen von zwei kommerziell erhältlichen Oxy-Fuel-Brennern am Hochtemperatur-Brennerprüfstand des GWI 	<ul style="list-style-type: none"> • Das CARS-Mess-Equipment wurde von Siegen nach Essen transportiert und dort am GWI-Brennerprüfstand aufgebaut. • Detaillierte Speziesfeldmessungen für beide Brenner wurden durchgeführt. • Aufgrund von massiven Falschlufteinträgen und extrem hohen Geschwindigkeiten sind die Speziesverteilungen für die Validierung von CFD-Reaktionsmodellen nicht nutzbar • Die CARS-Messungen demonstrieren die prinzipielle Eignung dieses Messprinzips für die non-invasive Temperaturmessung in extrem heißen, hochturbulenten Strömungen in großen Geometrien.
<ul style="list-style-type: none"> • Verschiedene etablierte und neu-entwickelte (bzw. für Oxy-Fuel adaptierte) CFD-Reaktionsmodelle wurden an einer Reihe von Testfällen (Sandia Flame D, IFRF-OXYFLAM A und B, O₂-Glaswanne Brenner 5) getestet • Vergleich der verschiedenen Modellansätze 	<ul style="list-style-type: none"> • Die Simulationen mit Hilfe des nicht-adiabaten Flamelet-Modells zeigen die Leistungsfähigkeit des Modells, gerade in Bezug auf starke Wärmeverluste. Spezies- und Temperaturverteilungen werden qualitativ und quantitativ gut wiedergegeben, auch im Brennernahbereich. • Das PDF-Gleichgewichtsmodell zeigt deutliche Verbesserungen im Vergleich zu den entsprechenden Simulationen aus dem Vorgängerprojekt O₂-Glaswanne auf. Eine gute Vorhersage der Flammenform und der Abgas-zusammensetzung und -temperatur konnte gezeigt werden. Im Brennernahbereich kommt es zu Abweichungen bei den Zwischenspezies,

	<p>die sich durch die zugrunde liegenden Modellannahmen erklären lassen. Das Flamelet-Modell mit seiner detaillierten reaktionskinetischen Modellierung ist hier überlegen.</p> <ul style="list-style-type: none"> ● Auf einen Test des reduzierten Reaktionsmechanismus wurde aus Zeitgründen verzichtet. Er ist auch nach wie vor zu umfangreich (17 Spezies) für den industriellen Einsatz ● Die Einbindung des entwickelten Flamelet-Modells in die kommerzielle Software FLUENT erweist sich aufgrund des nicht dokumentierten Interfaces als problematisch. Etwa 90 % der Dateistruktur konnten entschlüsselt werden.
<ul style="list-style-type: none"> ● Experimentelle und numerische Untersuchung eines industriellen Oxy-Fuel-Prozesses 	<ul style="list-style-type: none"> ● Dieser Arbeitspunkt konnte mangels einer geeigneten Anlage nicht realisiert werden.

10. Nutzen der Forschungsergebnisse

Die Zusammenarbeit des Gas- und Wärme-Instituts Essen e. V., des Lehrstuhls für Strömungsmechanik der Ruhr-Universität Bochum, des Lehrstuhls für Fluidodynamik der Universität Duisburg-Essen und des Lehrstuhls für Technische Thermodynamik der Universität Siegen gewährleistete eine umfassende, wissenschaftlich fundierte und anwendungsorientierte Bearbeitung der Fragestellung bzw. der Zielstellung des Projektes. Über die im projektbegleitenden Ausschuss beteiligten Unternehmen und Verbände ist auch ein schneller Transfer der Ergebnisse zu den Unternehmen in der Thermoprozesstechnik gegeben. Auf Grund der unterschiedlichen, sich ergänzenden Sach- und Fachkenntnisse und einer interdisziplinären Herangehensweise sind eine maximale Erfolgsquote und ein Transfer der Ergebnisse in weitere Branchen sichergestellt. Die Forschungsvereinigungen haben dabei die theoretischen, numerischen und messtechnischen Untersuchungen in enger Abstimmung mit den Firmen des projektbegleitenden Ausschusses durchgeführt. Die dabei entstandenen Diskussionen sorgen auch dafür, dass erste Ergebnisse den beteiligten Firmen sehr schnell zur Verfügung stehen. Die Gewährleistung der praktischen Umsetzbarkeit wird durch die beteiligten Firmen aus den unterschiedlichsten Bereichen (Ofenbau, Brennerhersteller, Anlagenbetreiber etc.) und ihre Teilnahme an den Sitzungen der projektbegleitenden Arbeitsgruppe garantiert.

10.1. Bisherige und für die Zukunft geplante Tätigkeiten zum Ergebnistransfer

Während der Projektlaufzeit wurden ein Kick-Off-Meeting (10.12.2013), zwei Sitzungen des projektbegleitenden Ausschusses (15.9.2014 und 28.04.2015) sowie ein Abschlusstreffen (12.11.2015) durchgeführt, auf denen dem im PbA organisierten Unternehmen und Verbänden die aktuellen Ergebnisse vorgestellt worden.

Weiterhin fanden zahlreiche Treffen zwischen den jeweiligen Forschungsstellen statt, um die Vorgehensweise bei verschiedenen Arbeitspaketen zu koordinieren.

Eine Auflistung der das Projekt betreffenden bisher erfolgten Vorträge und Veröffentlichungen auf nationalen und internationalen Konferenzen bzw. in den entsprechenden Fachzeitschriften sowie von Messeauftritten ist in **Kapitel 11** zu finden. Eine tabellarische Übersicht über die Aktivitäten zum Ergebnistransfer ist auf der nächsten Seite dargestellt.

Für den Zeitraum: **01.09.2013 – 30.11.2015**

	Zeitraum/ Termin	Maßnahme	Ziel/Bemerkung
Während der Projektlaufzeit	Halbjährlich	Sitzung des projektbegleitenden Ausschusses (PbA) - Kick-off-Meeting: 10.12.2013 - 1. PbA-Sitzung: 15.09.2014 - 2. PbA-Sitzung: 28.04.2015 - Abschlusssitzung 12.11.2015	Einbeziehung der Industrie in die Forschungsaktivitäten, Know-how-Transfer in und aus der Industrie
	jährlich	Tätigkeitsberichte in den Druckmedien gaswärme international, - gwi Ausgabe 01/2014 - gwi Ausgabe 01/2015 - gwi Ausgabe 01/2016	Bericht über den Fortschritt öffentlich geförderter Projekte am Gas- und Wärme-Institut
	jährlich	Vorträge in den Fachausschusssitzungen II und VI der DGG	17.11.2015 in Weiherhammer
	jährlich	Vorträge und Poster auf der Glas-technischen Tagung der DGG	Vorstellung der erzielten Ergebnisse vor einem breiten Fachpublikum
	jährlich	Veröffentlichung der erzielten Projektergebnisse auf der Homepage des GWI und der beteiligten Lehrstühle	Schnelle und aktuelle Bekanntmachung der Ergebnisse
	Quartalsweise	Newsletter des Gas- und Wärme-Institut Essen e. V.	Regelmäßiges Update der Ergebnisse
	2014	Glasstec-Messe, Düsseldorf	Vorstellung der bis dahin erzielten Ergebnisse
	2015	Thermprocess, Messe Düsseldorf	Vorstellung der bis dahin erzielten Ergebnisse
Nach Ende des Projektes	2016	Abschlussbericht	Zusammenstellung der Ergebnisse und Bereitstellung für PbA und interessierte KMU, Veröffentlichung auf der GWI-Homepage
	2016	Veröffentlichung in Fachzeitschriften: gaswärme international, DGG-Journal, ...	Vorstellung der erzielten Ergebnisse
	2017	Deutscher Flammentag	Vorstellung der erzielten Ergebnisse

	2016	ESG Conference, European Combustion Meeting, INFUB	Vortrag oder Poster sowie Diskussion der Ergebnisse vor bzw. mit internationalen Fachleuten
--	------	--	---

10.2. Wissenschaftlich-technischer Nutzen

Die Oxy-Fuel-Verbrennung gewinnt in vielen Bereichen der thermischen Verfahrenstechnik (Glas, Stahl, NE-Metallurgie etc.) zunehmend an Bedeutung. Ebenso wird die rechnergestützte Auslegung und Optimierung verfahrenstechnischer Anlagen immer verbreiteter. Diese Entwicklung betrifft sowohl die Hersteller der Anlagen und Komponenten (z. B. Brennerhersteller und Hersteller von Ofenanlagen) als auch die Anlagenbetreiber. Allerdings sind die Anwender von CFD-Simulations-Software, gerade im Bereich kleiner und mittelständiger Unternehmen, auf die Verlässlichkeit der vorhandenen Modellkomponenten solcher Software-Pakete angewiesen. Eine selbstständige Validierung oder gar Modellentwicklung liegt in der Regel weit außerhalb ihrer Möglichkeiten. Die im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Entwicklungsarbeiten zur effizienteren und belastbareren Modellierung der immer relevanteren Oxy-Fuel-Verbrennung sowie die detaillierte messtechnische Untersuchung solcher Verbrennungskonzepte stellen somit für den industriellen Anwender einen erheblichen Nutzen dar. Die Industrie sieht den Bedarf und die Notwendigkeit für belastbare und zeiteffiziente CFD-Modelle für Oxy-Fuel-Anwendungen, wie auch anhand der regen Beteiligung von Anlagenbetreibern, Brennerherstellern und Lieferanten technischer Gase im projektbegleitenden Ausschuss deutlich wurde.

Aus wissenschaftlicher Sicht wurde im Rahmen dieses Forschungsvorhabens eine Verbrennungstechnologie untersucht, die bisher außer im Bereich der Grundlagenforschung, kaum berücksichtigt worden ist. Die grundlegende Untersuchung dieses Verbrennungsvorgangs sowohl mit theoretischen als auch experimentellen und simulativen Methoden hat zu einem besseren Verständnis dieses Verbrennungsprozesses beigetragen. Diese Erkenntnisse helfen zudem bei der Beschreibung der Oxy-Fuel-Verbrennung durch verbesserte Reaktionsmodelle.

10.3. Wirtschaftlicher Nutzen für KMU

Der Markt für thermoprozesstechnische Anlagen und Komponenten ist in hohem Maße international; Wettbewerber aus aller Welt stehen in Konkurrenz zueinander. Im deutschsprachigen Raum ist diese Branche vor allem durch kleine und mittlere Unternehmen geprägt, die ihre Produkte weltweit vertreiben. Eine optimierte Auslegung der jeweiligen Anlagen und Komponenten hinsichtlich Wirkungsgrad (und damit reduzierter Brennstoffkosten) und Schadstoffemissionen stellt hier einen erheblichen Wettbewerbsvorteil dar. Computersimulationen steuern heute, neben der Werkstoff- und der Steuerungs- und Regeltechnik, einen wesentlichen Beitrag zur stetigen Verbesserung verfahrenstechnischer Anlagen und Komponenten bei, insbesondere bei der Brennertechnik und vor allem bei der Neuauslegung kom-

pletter Anlagen. Es gibt Industriezweige, z. B. Glas, in denen neue Anlagen nicht ohne vorherige Simulation gebaut werden.

Allerdings müssen bei der Simulation der Prozesse in einer Feuerungsanlage aus Gründen des numerischen Aufwands zwangsweise Modelle zur Beschreibung der Verbrennungsvorgänge eingesetzt werden. Diese Modelle müssen einerseits verlässliche Aussagen machen, andererseits aber auch numerisch effizient sein, also kurze Simulationszeiten („Stunden, nicht Wochen“) aufweisen. Anhand des Projekts „O₂-Glaswanne“ konnte aufgezeigt werden, dass hier noch erhebliche Defizite bei der schnellen und belastbaren Beschreibung der chemischen Prozesse der Oxy-Fuel-Verbrennung vorhanden sind.

Reaktionsmodelle, die für die effiziente und verlässliche Beschreibung von Oxy-Fuel-Feuerungen optimiert sind, bringen somit einen wesentlichen Wettbewerbsvorteil für die Unternehmen mit sich, die Computersimulationen in ihre Entwicklungsprozesse einfließen lassen. Gleiches gilt für die Betreiber verfahrenstechnischer Anlagen, die ihre Prozessfahrweise mit Hilfe von CFD-Simulationen untersuchen und optimieren.

Die aktive Mitarbeit und das große Interesse von Industrieunternehmen, insbesondere von KMU, zeigen deutlich, welche Bedeutung der computer-gestützten Produkt- und Prozessentwicklung für die internationale Wettbewerbsfähigkeit beigemessen wird.

Deutschland ist für seinen Know-how-Vorsprung auf dem Gebiet hoch-effizienter und schadstoffarmer Thermoprozessanlagen bekannt. Durch die Weiterentwicklung von computer-gestützten Simulationswerkzeugen kann dieser Vorsprung weiter ausgebaut werden. Deutsche KMU können durch verbesserte und effizientere Produkte und Anlagen weiter auf dem Weltmarkt bestehen und den Industriestandort Deutschland sichern.

11. Veröffentlichungen

Die nachfolgenden Veröffentlichungen sind während der Laufzeit des Projektes publiziert worden:

- Träger, J.W., Seeger, T.: Oxy-fuel combustion analysis in an industry relevant furnace via vibrational CARS thermometry, 7th European Combustion Meeting, Budapest, Ungarn, 2015
- Wollny, P., Wlokas, I., Kempf, A.: Modellierung einer nicht-vorgemischten Sauerstoff-Methan-Flamme im semi-industriellen Maßstab, 27. Deutscher Flammentag, Clausthal, Deutschland, 2015
- Wollny, P., Rogg, B., Kempf, A.: Modeling Heat Loss Effects in Oxy-Fuel Flames with a Multi-Dimensional Non-Premixed Flamelet Approach, 7th European Combustion Meeting, Budapest, Ungarn, 2015
- Journal of Raman Spectroscopy, eingereicht, 2015
- Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics 15 (2), S. 211 – 217, 2015
- Proceedings of Sensorica 2014, S. 52-53, 11.-13. November 2014, St. Petersburg, Russland, 2014

Das Projekt wurde auf folgenden Messen/Konferenzen/Tagungen/Fachsitzungen präsentiert, teilweise mit mehr als einem Beitrag:

- Glasstec, Düsseldorf, 21. - 24. Oktober 2014
- Giese, A., Leicher, J.: Modellierung der Oxy-Fuel-Verbrennung in der Hochtemperaturverfahrenstechnik, 3. Expertenforum Glas „Im Fokus: Energie und Effizienz“, Weiherhammer, Deutschland, 2015
- Fachausschuss DGG/HVG, Mainz, März 2015
- Thermodynamik-Kolloquium, Stuttgart, Deutschland, September 2014
European Conference on Nonlinear Optical Spectroscopy (ECONOS), Leuven, Belgien, April 2015

Weitere Veröffentlichungen und Vorträge sind sowohl für das Jahr 2016 eingereicht als auch geplant. Unter anderem:

- 90. Glastechnische Tagung der DGG, Goslar, Deutschland, 06.06. - 08.06.2016
- ESG 2016/SGT100: The 13th European Society of Glass Science and Technology Conference, Sheffield, UK, 04. -08. September 2016
- Glasstec 2016, Düsseldorf, 20. - 24. September 2016
- 11th International Conference on Industrial Furnaces and Boilers, (INFUB), Póvoa de Varzim, Portugal, 18. - 21. April 2017

Darüber hinaus ist die Bereitstellung des Abschlussberichtes im Downloadbereich der Internetseiten des GWI fest eingeplant.

12. Danksagung

Die Autoren bedanken sich an dieser Stelle bei den Partnern des Projektbegleitenden Ausschusses, durch deren Mitarbeit und unentgeltliche Bereitstellung von Materialien und Personal das Projekt durchgeführt werden konnte. Der Dank gilt auch der Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen (AiF) für die finanzielle Unterstützung durch Haushaltsmittel des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi).

Zu guter Letzt möchten wir auch allen Mitarbeitern der beteiligten Forschungsstellen für die gute und konstruktive Zusammenarbeit danken.

13. Literaturverzeichnis

- [1] Paul, R., "Effiziente Verbrennung für Industrieöfen mit der Sauerstoffverbrennung", *Gaswärme International*, no. 60, pp. 39 – 42, 2011.
- [2] Pfeifer, H., Högner, W., Fredriksson, P., von Schéele, J., Paul, R., "Energieeffizienz und Minderung des CO₂-Ausstoßes durch Sauerstoffverbrennung", *stahl und eisen*, vol. 129, no. 8, pp. 51–62, 2009.
- [3] MacLean, S., Leicher, J., Giese, A., Irlenbusch, J., "NO_x-arme Nutzung von Oxy-Fuel-Verbrennung mit stark N₂-haltigem Sauerstoff in der NE-Metallurgie", *Gaswärme International*, Heft 04, S. 85–92, 2012.
- [4] al-Chalabri, R., Schatz, C., Yap, L., Marshall, R., "Flat-flame oxy-fuel-burner technology for glass melting", *Ceramic Engineering and Science Proceedings*, vol. 16, no. 2, pp. 202–215, 1995.
- [5] Ross, C. P., Tincher, G. L., Rasmussen, M., "Glass Melting Technology: A Technical and Economic Assessment", Glass Manufacturing Industry Council / U.S. Department of Energy- Industrial Technologies Program, USA, #DE-FC36-021D14315, 2004.
- [6] Kluger, F., Mönckert, P., Wild, T., Marquard, A. Levasseur, A. A., "Entwicklungsstand der Oxy-Fuel-Verbrennungstechnologie", in *Kraftwerkstechnik - Sichere und nachhaltige Energieversorgung*, Bd. 2, TK-Verlag Karl Thomé-Kozmiensky, Neuruppin, 2010.
- [7] Kuckshinrichs, W., Markewitz, P., Linssen, J., Zapp, P., Peters, M., Köhler, B., Müller, T. E., Leitner, W., "Weltweite Innovationen bei der Entwicklung von CCS-Technologien und Möglichkeiten der Nutzung und des Recyclings von CO₂", Studie im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) Projektnummer 25/08 AZ I D4-020815, 2010.
- [8] Dunker, R., "Wege zum emissionsfreien Kraftwerk", *BWK*, Bd. 57, Nr. 11, S. 144–147.
- [9] Burchhardt, U., Lysk, S., Kosel, D., Griebe, S., Kass, H., Preusche, R., "Betriebserfahrungen aus zwei Jahren Testbetrieb der Oxyfuel-Forschungsanlage von Vattenfall", 42. Kraftwerkstechnisches Kolloquium, Dresden, 2010.
- [10] Baukal, C.E., Jr. (Hrsg.), *Oxygen-Enhanced Combustion*. CRC Press, 1998.
- [11] Skeen, S. A., Yablonsky, G., Axelbaum, R. L., "Characteristics of non-premixed oxygen-enhanced combustion: I. The presence of appreciable oxygen at the location of maximum temperature", *Combust. Flame*, vol. 156, pp. 2145–2152, 2009.
- [12] Skeen, S. A., Yablonsky, G., Axelbaum, R. L., "Characteristics of non-premixed oxygen-enhanced combustion: II. Flame structure effects on soot precursor kinetics resulting in soot-free flames", *Combustion and Flame*, no. 157, pp. 1745–1752, 2010.
- [13] von Schéele, J., Gartz, M., Paul, R., Lantz, M. T., Riegert, J. P., Söderlund, S., "Flameless oxyfuel combustion for increased production and reduced CO₂ and NO_x emissions", *stahl und eisen*, Band 128, Nr. 7, S. 35–40, 2008.

- [14] Wüning, J. G., Milani, A., *Handbuch der Brennertechnik für Industrieöfen - Grundlagen, Brenntechniken, Anwendungen*, 2. Ausgabe, Vulkan-Verlag, Essen, 2011.
- [15] Viduna, J., Skawinsky, P., Perrier, J.L., Habel, M., "Brûleurs à oxy-fuel HRI Cleanfire: les nouveaux brûleurs à flamme plate réduisent la consommation en carburant", *verre*, vol. 14, no. 4, pp. 52–57, 2008.
- [16] Mitchell, M. D., "Manville plant gets a boost from oxygen-gas firing. Use of this combustion system has resulted in a number of operational improvements", *Glass Industry*, vol. 73, no. 1, pp. 10–14, 1992.
- [17] Kobayashi, H., van Hassel, B., "CO2 Reduction by Oxy-Fuel Combustion: Economics and Opportunities", GCEP Advance Coal Workshop, Provo, USA, 2005.
- [18] Warnatz, J., Maas, U., Dibble, R. W., *Verbrennung: Physikalisch-Chemische Grundlagen, Modellierung und Simulation, Experimente, Schadstoffentstehung*, 3. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 2001.
- [19] Gas- und Wärme-Institut Essen e. V. (Hrsg.), *gwi-Arbeitsblätter*, Vulkan-Verlag, Essen, 2012.
- [20] MacLean, S., Leicher, J., Giese, A., Irlenbusch, J., "Low NOx oxy-fuel combustion in non-ferrous metallurgy", *heat processing*, no. 1, pp. 75–81, 2013.
- [21] Kobayashi, H., "Advances in Oxy-Fuel Fired Glass Melting Technology", 20th International Congress on Glass (ICG), Kyoto, Japan, 2004.
- [22] Schep, J. J., "A decade of oxy-fuel glass melting in The Netherlands", Séminaire d'Institut du Verre, Glasstec, 2002.
- [23] schott, 08-Oct-2012.
- [24] "Maßnahmen zur Einhaltung der Emissionshöchstmengen der NEC-Richtlinie", Umweltbundesamt, Forschung 205 42 221 UBA-FB 001014, 2007.
- [25] Lindig, M., "Erfahrungen mit einer Gas-Sauerstoff-befeuerten Spezialglaswanne mit nachgeschaltetem SNCR-Verfahren", 72. Glastechnische Tagung, Wernigerode, 2001.
- [26] Wachter, G., Lindig, M., "Erdgas/Sauerstoff befeuerte Spezialglaswannen - Erfahrungsbericht", Erdgaseinsatz in industriellen Thermoprozessanlagen - 4. GWI-Kolloquium, Essen, 1999.
- [27] Lallemand, N., Dugué, J., Weber, R., "Analysis of the Experimental Data Collected during the OXYFLAM-1 and OXYFLAM-2 Experiments - Part One", F 85/Y/4, International Flame Research Foundation, IJmuiden, Niederlande, 1997.
- [28] Lallemand, N., Verlaan, A., Weber, R., "Analysis of the Experimental Data Collected during the OXYFLAM-3 Experiment - Part One", F 85/Y/5, International Flame Research Foundation, IJmuiden, Niederlande, 1997.
- [29] Smith, G. P., Golden, D. M., Frenklach, M., Moriarty, N. W., Eiteneer, B., Goldenberg, M., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Song, S., Gardiner Jr., W. C., Lissianski, V. V., Quin, Z., 2000. [Online]. Available: www.me.berkeley.edu/gri_mech.

- [30] Westbrook, C. K., Dryer, F. L., "Simplified Reaction Mechanisms for the Oxidation of Hydrocarbon Fuels in Flames", *Combustion Science and Technology*, vol. 27, no. 1–2, pp. 31–43, 1981.
- [31] Jones, W. P., Lindstedt, R. P., "Global reaction schemes for hydrocarbon combustion", *Combustion and Flame*, vol. 73, no. 3, pp. 233–249, 1988.
- [32] Maas, U., Pope, S. B., "Simplifying chemical kinetics: Intrinsic low dimensional manifolds in composition space", *Combust. Flame*, vol. 88, pp. 239–264, 1992.
- [33] Maas, U., Pope, S. B., "Implementation of simplified chemical kinetics based on intrinsic low-dimensional manifolds", *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 24, no. 1, pp. 103–112, 1992.
- [34] Androulakis, I. P., "Kinetic mechanism reduction based on an integer programming approach", *AIChE Journal*, vol. 46, no. 2, pp. 361–371, 2000.
- [35] Sikalo, N., Hasemann, O., Schulz, C., Wlokas, I., Kempf, A., "Reduction and Optimization of Chemical Kinetic Mechanisms using Genetic Algorithms", 26. Deutscher Flammentag, Duisburg, 2013, pp. 653–663.
- [36] Leicher, J., Giese, A., "Untersuchungen zum Einsatz der Oxy-Fuel-Technologie in Glasschmelzwannen (AiF-Nr. 15987 N)", Fachausschusssitzung II der Deutschen Glastechnischen Gesellschaft, Würzburg, 2012.
- [37] Cuoci, A., Frassoldati, A., Faravelli, T., Ranzi, E., Candusso, C., Tolazzi, D., "CFD simulation of a turbulent oxy-fuel flame", Processes and Technologies for a Sustainable Energy, Ischia, Italien, 2010.
- [38] Peters, N., "Laminar flamelet concepts in turbulent combustion", *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 21, no. 1, pp. 1231–1250, 1988.
- [39] Peters, N., "Laminar diffusion flamelet models in non-premixed turbulent combustion", *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 10, no. 3, pp. 319–339, 1984.
- [40] Pitsch, H., Chen, M., Peters, N., "Unsteady flamelet modeling of turbulent hydrogen-air diffusion flames", *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 27, no. 1, pp. 1057–1064, 1998.
- [41] Joos, F., *Technische Verbrennung: Verbrennungstechnik, Verbrennungsmodellierung, Emissionen*. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
- [42] Chen, C.-S., Chang, K.-C. Chen, J.-Y., "Application of a Robust Beta-pdf Treatment to Analysis of Thermal NO Formation in Nonpremixed Hydrogen-Air Flame", *Combust. Flame*, vol. 98, pp. 375–390, 1994.
- [43] "Untersuchung zur Verbesserung der Energieeffizienz und der Wärmeübertragung einer Oxy-Fuel-Glasschmelzwanne - 'O2-Glaswanne'", Abschlussbericht zum AiF-Forschungsprojekt Nr. 15987 N, Essen, 2012.
- [44] Magnussen, B. F., "The Eddy Dissipation Concept: A Bridge between Science and Technology", ECCOMAS Thematic Conference on Computational Combustion, Lissabon, Portugal, 2005.

- [45] Kee, R. J., Grcar, J. F., Smooke, M. D., Miller, J. A., "A FORTRAN Program for Modeling Steady Laminar One-Dimensional Premixed Flames", SANDIA National Laboratories, SAND 85-8240, 1985.
- [46] Benim, A. C., Kuppa, K., Pfeiffelmann, B., al-Halbouni, A., Rahms, H., Giese, A., "Numerical Studies on Modelling Supersonic Combustion", Sixth International Conference on Thermal Engineering: Theory and Applications, Istanbul, Türkei, 2012.
- [47] Childs, P. R. N., Greenwood, J. R., Long, C. A., "Review of Temperature Measurements", *Rev. Sci. Instrum.*, no. 71, pp. 2959–2977, 2000.
- [48] Leipertz, A., Haumann, J., Fiebig, M., "Contact-Free Measurements of Oxygen Concentration in Industrial Flames by Raman Scattering", *Chem. Eng. Technol.*, no. 10, pp. 190–203, 1987.
- [49] Eckbreth, A. C., "Laser diagnostics for combustion temperature and species", 2nd Edition, Gordon and Breach Publishers, Amsterdam, Niederlande, 1996.
- [50] Seeger, T., "Moderne Aspekte der linearen und nichtlinearen Raman-Streuung zur Bestimmung thermodynamischer Zustandsgrößen in der Gasphase", Habilitationsschrift, Universität Erlangen, 2006.
- [51] Brackmann, C., Bood, J., Afzelius, M., Bengtsson, P.-E., "Thermometry in internal combustion engines via dual-broadband rotational coherent anti-Stokes Raman spectroscopy", *Meas. Sci. Technol.*, no. 15, pp. R13–R25, 2004.
- [52] Birkigt, A., Michels, K., Theobald, J., Seeger, T., Gao, Y., Weikl, M., Wensing, M., Leipertz, A., "Investigation of compression temperature in highly charged spark-ignition engines", *Int. J. Eng. Research*, no. 12, pp. 274–281, 2011.
- [53] Alden, M., Wallin, S., "CARS experiments in a full-scale (10 x 10 m) industrial coal furnace", *Appl. Opt.*, no. 24, pp. 3434–3437, 1987.
- [54] Hildenbrand, S., Staudacher, S., Brüggemann, D., Beyrau, F., Weikl, M. C., Seeger, T., Leipertz, A., "Numerical and experimental study of the vaporization cooling in gasoline direct injection sprays", *Proc. of the Combust. Inst.*, no. 31, pp. 3067–3073, 2007.
- [55] Kampmann, S., Seeger, T., Leipertz, A., "Simultaneous CARS and 2D laser Rayleigh thermometry in a contained technical swirl combustor", *Appl. Opt.*, no. 34, pp. 2780–2786, 1995.
- [56] Kampmann, S., "Entwicklung einer zweidimensionalen Laser-Rayleigh Temperaturmeßsonde zur Untersuchung hochturbulenter Verbrennungsvorgänge in einem industriellen Drallbrenner", Heft 94.2, ESYTEC, Erlangen, 1994.
- [57] Brackmann, C., Bood, J., Bengtsson, P.-E., Seeger, T., Schenk, M., Leipertz, A., "Simultaneous vibrational and pure rotational coherent anti-Stokes Raman spectroscopy for temperature and multi-species concentration measurements demonstrated in sooting flames", *Appl. Opt.*, no. 41, pp. 564–572, 2002.
- [58] "www.ansys.com".
- [59] ANSYS FLUENT Users Guide. 2013.

- [60] "OpenFOAM - The open source CFD toolbox." [Online]. Available: www.openfoam.com.
- [61] Chen, G., Xiong, Q., Morris, P.J., Paterson, E.G., Sergeev, A., Wang, Y.-C., "OpenFOAM for Computational Fluid Dynamics" *Notices of the AMS*, vol. 61, no. 4, pp. 354–363, 2014.
- [62] "Code_Saturne." [Online]. Available: www.code-saturne.org.
- [63] Moin, P., Kim, J., "Tackling Turbulence with Supercomputers", *Scientific American*, 1997.
- [64] *FLUENT User Guide, Version 13.0*. 2010.
- [65] *FLUENT Theory Guide, Version 13*. 2010.
- [66] Ferziger, J. H., Peric, M., *Numerische Strömungsmechanik*, 1. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 2007.
- [67] Versteeg, H., Malalasekera, W., *An Introduction to Computational Fluid Dynamics: The Finite Volume Method*, 2nd Edition. Prentice Hall, 2007.
- [68] Görner, K., *Technische Verbrennungssysteme*, Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- [69] Magnussen, B. F., Hjertager, B. H., "On mathematical models of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion", *Proceedings of the 16th International Symposium on Combustion*, 1976.
- [70] Launder, B. E., Spalding, D. B., "The Numerical Computation of Turbulent Flows", *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, pp. 269–289, 1974.
- [71] Magnussen, B. F., "The Eddy Dissipation Concept: A Bridge between Science and Technology", ECCOMAS Thematic Conference on Computational Combustion, Lissabon, Portugal, 2005.
- [72] Glarborg, P., Kee, R. J., Gcar, J. F. Miller, J. A., "PSR: A FORTRAN Program for Modeling Well-Stirred Reactors", SANDIA National Laboratories, SAND 86-8209, 1986.
- [73] Poinso, T., Veynante, D., *Theoretical and Numerical Combustion*. Edwards, 2001.
- [74] Peters, N., *Turbulent Combustion*. Cambridge University Press, 2000.
- [75] Brizuela, E.A., Deconinck, W., Lacor, C., "Accurate Numerical Computation of the Beta PDF", *Industrial Combustion (IFRF)*, p. Article No. 200902, 2009.
- [76] Giese, A., "'Verdünnte Verbrennung' bei regenerativ beheizten Glasschmelzwannen", Fachausschusssitzung VI der DGG "Umweltschutz", Würzburg, 2007.
- [77] Lopez, J.G., Rasmussen, M.U, Alzueta, Y., Gao, P., Marshall, Glarborg, P., "Experimental and kinetic modeling study of C₂H₄ oxidation at high pressure", *Proc. of the Combust. Inst.*, no. 32, pp. 367–375, 2009.
- [78] Glarborg, P., Bentzen, L.L.B., "Chemical effects of a high CO₂ concentration in oxy-fuel combustion of methane", *Energy & Fuels*, no. 22, pp. 291–296, 2008.
- [79] Rasmussen, C.L., Glarborg, P., "Sensitizing Effects of NO_x on CH₄ Oxidization at High Pressure", *Combust. Flame*, no. 154, pp. 529–545, 2008.

- [80] Frassoldati, A., Cuoci, A., Faravelli, T., Ranzi, E., Candusso, C., Tolazzi, D., "Simplified kinetic schemes for oxy-fuel combustion", 1st International Conference on Sustainable Fossil Fuels for Future Energy, Rom, Italien, 2009.
- [81] Cheng, Z., Wehrmeyer, J.A., Pitz, R.W., "Experimental and numerical studies of opposed oxygen-enhanced methane diffusion flame", *Combust. Sci. Technol.*, no. 178, pp. 2145–2163, 2006.
- [82] Computational and experimental study of oxygen-enhanced axi-symmetric methane flames, "Bennett, B.A.V., Chen, Z., Pitz, R.W., Smooke, M.D.," *Combustion Theory and Modelling*, no. 12:3, pp. 497–527, 2008.
- [83] Lu, T.F., Law, C.K., "Linear time reduction of large kinetic mechanisms with directed relation graph: n-heptane and iso-octane", *Combust. Flame*, vol. 144, pp. 24–36, 2006.
- [84] Lu, T.F., Law, C.K., "A directed relation graph method for mechanism reduction", *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, pp. 1333–1341, 2005.
- [85] Karalus, M., "An investigation of lean blowout of gaseous fuels, alternatives to natural gas", University of Washington, Seattle, USA, 2013.
- [86] Lu, T.F., Law, C.K., "Strategies for mechanism reduction for large hydrocarbons: n-heptane", *Combust. Flame*, vol. 154, pp. 153–163, 2008.
- [87] Chen, J.Y., "Development of reduced chemical kinetics for numerical modelling of turbulent combustion", Workshop on "Numerical Aspects of Reduction in Chemical Kinetics, Champs-sur-Marne, France, 1997.
- [88] Peters, N., "Reducing mechanisms", in *Reduced kinetic mechanisms and asymptotic approximations for methane-air flames (Hrsg. M.D. Smooke)*, Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- [89] "Gas-Phase Kinetics Core Utility Manual", Reaction Design, 2002.
- [90] "The COSILAB code."
- [91] Claramunt, K., Consul, R., Carbonell, D., Perez-Segarra, C.D., "Analysis of the laminar flamelet concept for non-premixed laminar flames", *Combust. Flame*, no. 145, pp. 845–862, 2006.
- [92] Barlow, R., Frank, J., "Piloted CH₄/Air Flames C,D,E and F - Release 2.1.," 2007.
- [93] Barlow, R., Frank, J., "Effects of turbulence on species mass fractions in methane/air jet flames", *Proceedings of the 27th International Symposium on Combustion*, pp. 1087–1095, 1998.
- [94] Grosshandler, W.L., "RADCAL: A narrow-band model for radiation calculations in a combustion environment", NIST Technical Note 1402, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA, 1993.
- [95] Proch, F., Kempf, A.M., "Modeling heat loss effects in the large eddy simulation of a model gas turbine combustor with premixed flamelet generated manifolds", *Proc. of the Combust. Inst.*, vol. 35, 2014.

- [96] Leicher, J., Giese, A., “Investigations on the Numerical Modeling of Oxy-Fuel Combustion Processes in Glass Melting Furnaces”, IFRF 17th Member Conference, Maffliers, Frankreich, 2012.
- [97] “CeISian.” [Online]. Available: www.celsian.nl.
- [98] “Glass Service: A model approach to glass melting optimisation”, *Glass*, vol. 83, no. 5, pp. 12–13, 2006.
- [99] “www.gsl.cz.” .