

## 5 Diskussion und Ausblick

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der absoluten Konzentrationsmessungen von CH- und CH-Radikalen diskutiert. Anschließend an die Diskussion wird im Hinblick auf weitere Experimente, sowie Simulationen und Modellierungen, ein Ausblick auf zukünftige Studien erstellt.

### *CH-Konzentrationsverteilung:*

Das hier untersuchte CH Radikal ist nicht nur wichtig als Zwischenprodukt in der "Prompt"-NO Bildung, sondern bietet in laminaren Flammen, gemeinsam mit C<sub>2</sub>, eine Möglichkeit zur Lokalisierung der Flammenfront [Alle86]. Die in dieser Arbeit gemessenen Konzentrationsverläufe von CH-Radikalen in dem Graphitverbrennungsreaktor können deshalb zur Identifikation der Reaktionszone während der Zersetzung des Graphit dienen.

Während des Graphitverbrennungsprozeß konnten in der stöchiometrischen Knallgasflamme Maximalkonzentrationen an CH von  $0,68 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  in der Mitte des Graphitsubstrats bei einem Abstand zum Graphit von 1,5 mm gemessen werden. Die Bestimmung der absoluten Konzentrationen erfolgte durch den Einsatz der Raman-Kalibration an Stickstoff. Eine zweite, unabhängige Vergleichsmessung, unter Einsatz einer gut charakterisierten Referenzflamme [Cros00], ergab durch ein Vergleich der CH-LIF-Signalintensitäten, innerhalb der Fehlergrenzen ( $\pm 20 \%$ ) übereinstimmende absolute CH-Konzentrationen, bei vergleichbaren Meßbedingungen. Die in dieser Flamme gemessenen maximalen CH-Signale waren 15-mal höher, als die während der Graphitverbrennung detektierten Maximalkonzentrationen. Dies entspricht einer absoluten CH-Konzentration für das Graphitsystem von  $0,85 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ .

Im Fall der brennstoffreichen Knallgasflamme wurde die maximale Konzentration an CH nicht in der Substratmitte, sondern seitlich um 12,5 mm verschoben in einem Abstand von 5,0 mm zum Graphit detektiert. Die Zunahme der absoluten CH-Konzentration von der mageren zu der brennstoffreichen Knallgasflamme ist in guter Übereinstimmung mit den Modellierungen der Knallgasflamme (Abb. 3.2f). Die Teilchendichte der Wasserstoffatome liegt in der beobachteten Reaktionszone der brennstoffreichen Knallgasflamme etwa 50 % höher als in der mageren. Daran ist zu erkennen, daß die Wasserstoffatomkonzentration einen erheblichen Einfluß auf die Bildung der CH-Radikale ausübt. Interessant ist, daß die hier gemessenen CH-Konzentrationsprofile recht nah an den Verteilungsprofilen des CN-Radikals liegen (s.u.).

*CN-Konzentrationsverteilung:*

Das CN-Radikal stellt im Vergleich zu dem CH-Radikal kein direktes Zwischenprodukt der Graphitverbrennung dar. Es ist jedoch neben CH ein wichtiges Schlüsselprodukt bei der Bildung von "Prompt"-NO. Das in dieser Arbeit gemessene CN tritt im Vergleich zu Flammen, die mit stickstoffhaltigen Gasen dotiert wurden, nicht über einen größeren Verteilungsbereich als das detektierte CH auf. Die Ursache liegt in der speziellen Anordnung des Graphitsubstrats über der Brenneroberfläche. Das dadurch erzeugte Staupunktströmungsprofil ermöglicht kein Ausdehnen der CN-Zone über den Graphit hinaus. Nach unten, in Richtung des Brenners, ist die Zersetzung der gebildeten CN-Spezies durch die Reaktionen mit den anströmenden Wasserstoff- und Sauerstoffatomen so schnell, dass eine Aufweitung des Verteilungsprofils kaum möglich scheint. Somit kann CN lediglich in dem schmalen Wirkungsbereich der CH-Zone gebildet werden. Damit limitiert die Konzentrationsverteilung von CH, den Bereich in dem CN-Radikale gebildet werden. Die hier zudotierten Mengen an NO (1,8 %) orientierten sich an der Arbeit von W. Juchmann [Juch98], und sollen eine schnellere Simulation der Verbrennungsvorgänge durch Modifikation bereits erstellter Modellsysteme [Warn96, Lind88, GRI3.0] ermöglichen. Die in der stöchiometrischen Knallgasflamme gemessenen CN-Maximalkonzentrationen von  $1,04 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , wurden wie CH in der Graphitmitte, in einem Abstand von 1,5 mm zur Graphitoberfläche gemessen. In der brennstoffreichen Knallgasflamme betrug die Maximalkonzentration an CN  $1,61 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ .

*Ausblick:*

Zusätzlich zu den bereits erwähnten Folgeexperimente sollen hier noch weitere Aussichten auf die Erweiterung der Datenbasis im Hinblick auf die Graphitverbrennung vorgestellt werden. Zum einen kann durch die Variation der zudotierten Menge an NO, im Hinblick auf Simulationen, ein kompletter Konzentrationsverlauf des NO vom Brenneraustritt bis hin zur Graphitoberfläche untersucht werden. Dazu kann die schon bewährte LIF-Technik zum Einsatz kommen. Desweiteren ermöglicht die Zugabe an NO die Messung eines Temperaturverlaufs nicht nur innerhalb der Reaktionszone in Graphitnähe, sondern auch bis hin zu der Brenneroberfläche.

Weiterhin kann die Abhängigkeit der Reaktionszone von dem Reaktordruck auf eine veränderte Konzentrationsverteilung der Spezies untersucht werden. Zusätzlich gibt die Verwendung verschiedener Graphitarten Aufschluß über die Selektivität der

Abbaureaktionen. Durch den Einsatz der Quadrupol-Massenspektroskopie (QMS), soll eine Charakterisierung und Quantifizierung größerer Moleküle ( $\text{CH}_3$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ , usw.) erzielt werden. Mit dem Einsatz hochdefinierter Graphite (HOPG = **Hochorientierter Pyrolytischer Graphit**) ist es möglich mit Hilfe der Raster-Tunnelmikroskopie (RTM) eine in-situ-Diagnostik der ablaufenden Oberflächenprozesse während des Verbrennungsvorgangs mit atomarer Auflösung zu erreichen. Im Bereich der Modellierung ist eine Umkehrung eines schon vorhandenen Wachstumsmechanismus von Diamant denkbar, der durch geeignete Modifikation der Parameter, auf die Verbrennung von Graphit angepaßt werden kann. Letztendlich sollen Verbrennungsprozesse realer Kohlesubstrate untersucht und mit den bereits ermittelten Daten der Graphitverbrennung verglichen werden.