

6 Zusammenfassung

Der Mangel an Informationen über die elementarkinetischen Abläufe der Kohleverbrennung soll durch die Verwendung einfacher, jedoch im Hinblick auf mögliche Computersimulationen sehr gut charakterisierbarer Verbrennungssysteme, verringert werden. Dazu wurde die Verbrennung von Graphit, als einfachster Vertreter der polyaromatischen Kohlenstoffverbindungen, über einer sehr genau modellierbaren Knallgasflamme durchgeführt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Radikalkonzentrationen von CH und CN von der Graphitoberfläche in zwei Knallgasflammen verschiedener Stöchiometrie ($\Phi = 1,0$ und $\Phi = 1,5$) in einem Niederdruckbrenner quantitativ untersucht. Als berührungsfreie Diagnosetechnik wurde die laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie (LIF) verwendet. Durch die Dotierung von Stickstoffmonoxid (1,8 % NO) in die Knallgasflamme konnte CN als stickstoffhaltiges Verbrennungsradikal vor der Graphitoberfläche in ausreichenden Konzentrationen erzeugt werden. Mithilfe der laserinduzierten Fluoreszenz gelang es, einen experimentellen Datensatz über die Konzentrationsverläufe der Radikale CH und CN für zukünftige detaillierte Modellierungen der Graphitverbrennung zu erstellen. Dabei wurden zunächst relative Konzentrationsverteilungen der Verbrennungsradikale mittels LIF ermittelt. Zusätzlich wurde für CH ein LIF-Signalvergleich mit einer sehr gut charakterisierten Referenzflamme durchgeführt. Zur Quantifizierung der relativen Konzentrationsprofile war die Messung der effektiven Lebensdauern der CH- und CN-Radikale notwendig. Damit konnten die Korrekturen in Bezug auf die Löschung der Fluoreszenz (Quenching) durchgeführt werden. Für beide Stöchiometrien ergab sich innerhalb der Fehlergrenzen (± 5 ns) dieselbe effektive Lebensdauer τ_{eff} , wenn dasselbe Radikal betrachtet wurde (CH $\tau_{\text{eff}} = 29 \pm 5$ ns, CN $\tau_{\text{eff}} = 15 \pm 5$ ns). Die abschließende Kalibration der Detektionseffizienz erfolgte durch die Ramanstreuung an Stickstoff. Die Temperaturmessungen an Vorder- und Rückseite des Graphits bei verschiedenen Abständen von Graphitoberfläche zu Brenner und unterschiedlichen Knallgasstöchiometrien beinhalten wichtige Informationen über den Wärmeabtransport der Kohlenstoffschicht im Hinblick auf exakte Modellierungen des Verbrennungsexperiments. Die aus CH-Rotationsspektren ermittelten Gasphasentemperaturen in der Reaktionszone wurden für die Berechnungen der quantitativen Konzentrationen benötigt. Sie zeigen nur eine geringe Veränderung als Funktion des Abstandes zur Graphitoberfläche ($T_{\text{CH-Gas}} = 1500 \pm 75$ K für $\Phi = 1,0$ und $T_{\text{CH-Gas}} = 1200 \pm 75$ K für $\Phi = 1,5$). Die erhaltenen Konzentrationsverläufe zeigen, daß

CH und andere Kohlenwasserstoffradikale, Partner bei der Bildung von CN-Radikalen darstellen, da CN in den Bereichen detektiert werden kann, in denen CH formiert wird. Der Vergleich der beiden Knallgasflammen, $\Phi = 1,0$ und $\Phi = 1,5$ zeigt, daß die absoluten Maximalkonzentrationen sowohl von CH als auch von CN um 1,68 bzw. 0,78 mal in den "fetten" Knallgasflammen größer sind als die Konzentration in den brennstoffarmen Flammen. Jedoch sind die Maximalkonzentrationen an CH in beiden Stöchiometrien ($\Phi = 1,0 \rightarrow 0,68 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ und $\Phi = 1,5 \rightarrow 1,14 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) um einen Faktor von 6,5 bzw. 7,1 größer, als die der CN-Radikale ($\Phi = 1,0 \rightarrow 1,04 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ und $\Phi = 1,5 \rightarrow 1,61 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$). Insgesamt hat der Bereich der Reaktionszone, in der beide Spezies detektiert werden konnten, die Form einer flachen Glocke, deren Öffnung zu der Brenneroberfläche gerichtet ist. Die Aufnahmen Emissionsspektren dienen zur Charakterisierung weiterer in der Reaktionszone vorhandener Spezies. Dabei konnten C_2 - und C_3 -Radikale identifiziert werden. Die Quantifizierung weiterer Gasphasen- und Oberflächenspezies soll im Rahmen auf dieser Arbeit aufbauenden Studien unter Einsatz massenspektroskopischer Methoden mit Molekularstrahlprobennahme, thermisch programmierter Desorption (TPD) und Rastertunnelmikroskopie erfolgen. Dadurch sollte die Entwicklung eines auf Elementarreaktionen basierenden Oberflächenmechanismus, der auch die Diffusion adsorbierter Teilchen zu reaktiven Zentren beinhaltet, für die Graphitverbrennung möglich sein.