

Automatische Reduktion chemischer Reaktionsmechanismen am Beispiel der  
Oxidation von höheren Kohlenwasserstoffen und deren Verwendung in  
reaktiven Strömungen

INAUGURAL-DISSERTATION

zur  
Erlangung der Doktorwürde  
der Naturwissenschaftlich-Mathematischen Gesamtfakultät  
der  
Ruprecht-Karls-Universität  
Heidelberg

vorgelegt von

**Berthold Andreas Schramm**

geboren in Andernach

Gutachter Prof. Dr. Dr. h.c. Jürgen Warnatz  
Prof. Dr. Bernhard Schramm

Tag der mündlichen Prüfung: 25.4.2003

**Interdisziplinäres Zentrum für Wissenschaftliches Rechnen  
Ruprecht – Karls – Universität Heidelberg  
2003**



T h e m a

**Automatische Reduktion chemischer Reaktionsmechanismen am Beispiel der Oxidation  
von höheren Kohlenwasserstoffen und deren Verwendung in reaktiven Strömungen**

Gutachter Prof. Dr. Dr. h.c. Jürgen Warnatz  
Prof. Dr. Bernhard Schramm



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>7</b>
<b>2. Reaktionskinetik</b>	<b>9</b>
2.1 Einleitung	9
2.2 Reaktionsgeschwindigkeit	9
2.3 Elementarreaktionen	10
2.4 Rückreaktionen	10
2.5 Enthalpie eines chemischen Gemisches	11
<b>3. Theoretische Beschreibung der ILDM-Methode</b>	<b>13</b>
3.1 Homogene Reaktionssysteme	13
3.2 Intrinsische niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeiten	15
3.3 Eigenwertanalyse chemischer Systeme	15
3.4 Mathematische Formulierung der ILDM-Methode	18
3.5 Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit	21
3.6 Parametrisierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit	22
3.6.1 Notwendige Eigenschaften der Parametrisierungsvariablen	23
3.6.2 Verwendete Parametrisierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit	24
3.7 Parametersätze, für die keine ILDM existiert	25
3.8 Zustände, die nicht auf der Mannigfaltigkeit liegen	26
3.9 Wechselwirkung mit physikalischen Prozessen	27
<b>4. Numerische Berechnung der ILDM</b>	<b>31</b>
4.1 Einleitung	31
4.2 Umformulierung des Gleichungssystems	31
4.3 Numerische Lösung des Gleichungssystems	33
4.3.1 Schneller Algorithmus unter Verwendung einer Fixpunktiteration	33
4.3.2 Algorithmus für sehr steife und nicht-lineare chemische Systems	35

4.4 Bestimmung eines geeigneten Schätzwertes für die Berechnung eines ILDM-Punktes	37
4.4.1 Grundlegende Überlegungen zur Wahl des Schätzwertes	37
4.4.2 Adaptive Verfeinerung des Tabellengitters	37
4.4.3 Suche eines Schätzwertes bei In-Situ-Tabellengenerierung	38
4.4.4 Berechnung des ersten ILDM-Punkts in der Tabelle	40
4.5 Bestimmung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit durch ein Fortsetzungsverfahren	40
<b>5. Tabellierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit</b>	<b>43</b>
5.1 Motivation	43
5.2 Datenstruktur einer ILDM-Tabelle	43
5.2.1 Binäre Suchbäume	43
5.2.2 AVL-Bäume	44
5.3 Zugriff auf gespeicherte Daten	45
5.3.1 Interpolation	45
5.3.2 Schneller Zugriff auf Daten	46
5.3.3 In der ILDM-Tabelle gespeicherte Daten	46
5.4 Tabellierungskoordinaten	47
5.4.1 Wahl der Tabellenkoordinaten	47
5.4.2 ILDM-Tabellen für nicht-isobare Systeme	48
5.5. Adaptive Verfeinerung des Tabellengitters	48
5.5.1 Verkleinerung der Gitterschrittweite im Rahmen der Numerik	48
5.5.2 ILDM-Tabellen mit konstanter Gitterschrittweite	49
5.5.3 Motivation für die Verwendung eines adaptiven Koordinatengitters	50
5.5.4 Algorithmus zur adaptiven Verfeinerung der Tabellenschrittweite	51
5.5.5 Vergleich der Tabellierung mit fester und adaptiver Schrittweite	52
5.6 In-situ-Generierung von ILDM-Tabellen	53

<b>6. Modelle für Bereiche, in denen keine ILDM existiert</b>	<b>55</b>
6.1 Bereiche im Zustandsraum, die nicht mit niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit	55
6.2 Implementiertes Standardmodell	55
6.2.1 Modell für die Dichte und die Enthalpie	56
6.2.2 Modell bei der ILDM-Implementierung mit Skelettspezies	57
6.3 Kopplung mit einem Zündmodell	57
<b>7. Parallelisierung des Programms zur Generierung von ILDM-Tabellen</b>	<b>59</b>
7.1 Motivation für die Parallelisierung	59
7.2 Abschätzung der Möglichkeit für die Parallelisierung der Tabellen-generierung	59
7.3 Wahl der Methode	60
7.4 Kommunikation zwischen den Prozessoren	62
7.5 Algorithmus zum Erstellung einer ILDM-Tabelle	63
7.6 Vergleich der Effizienz bei verschiedener Prozessoranzahl	63
7.7 Ergebnis bei Generierung einer 2-dimensionalen ILDM-Tabelle	64
7.8 Diskussion der Ergebnisse	66
<b>8. Verwendung von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten mit variabler Dimension</b>	<b>67</b>
8.1 Motivation	67
8.2 Implementation der ILDM-Methode mit einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen in einem CFD-Programm	69
<b>9. Simulation von homogenen Systemen bei Verwendung der ILDM-Methode</b>	<b>74</b>
9.1 Einleitung	74
9.2 Numerische Lösung der Erhaltungsgleichungen	74
9.2.1 Wahl des Algorithmus zur Lösung der Erhaltungsgleichungen bei der Simulation mit detaillierter und reduzierter Chemie	74
9.2.2 Eulerverfahren mit variablem Zeitschritt	76

9.3 Vergleich der Simulationsergebnisse bei Verwendung von detaillierter und reduzierter Chemie	76
9.3.1 Simulation eines homogenen Systems auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit	76
9.3.2 Untersuchung der Relaxation auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit	77
<b>10. Simulation laminarer Flammen mit detaillierter und reduzierter Chemie</b>	<b>79</b>
10.1 Einleitung	79
10.2 Erhaltungsgleichungen für eindimensionale laminare Flammen	80
10.3 Simulation einer eindimensionalen laminaren freien Flamme	81
10.3.1 Verwendete physikalische Modelle	81
10.3.2 Implementation der reduzierten Chemie	82
10.4 Simulationsergebnisse für freie laminare Vormischflammen	83
10.5 Diskussion der Ergebnisse	87
<b>11. Zusammenfassung</b>	<b>89</b>
<b>12. Literaturverzeichnis</b>	<b>91</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Wegen der immer knapper werdenden fossilen Brennstoffe und des steigenden weltweiten Energieverbrauchs müssen die vorhandenen Rohstoffe ökonomischer eingesetzt werden. Der Energieverbrauch von Motoren muß gesenkt werden, ohne aber die Motorleistung zu verringern. Zudem zwingen immer schärfere Umweltgesetze die Hersteller, Motoren und Turbinen mit einem immer geringeren Schadstoffausstoß zu bauen. Dabei ist speziell die Minimierung des  $\text{NO}_x$ -Ausstoßes und die Verringerung der Rußbildung bei Dieselmotoren zu nennen.

Die Hersteller müssen die Motoren immer weiter verbessern und neue Verfahren entwickeln. Dies führt zu einem hohen Entwicklungsaufwand. Er könnte deutlich gesenkt werden, wenn es gelingt auch komplexe Verbrennungssysteme zuverlässig zu simulieren.

Bei technischen Verbrennungssystemen müssen neben den physikalischen Transportprozessen auch die chemischen Reaktionen berücksichtigt werden. Die detaillierten Reaktionsmechanismen für die meisten Brennstoffsysteme beinhalten mehr als hundert Spezies, für die alle die Navier-Stokes-Gleichungen zu lösen sind. Zudem zeichnen sich diese Mechanismen durch eine sehr hohe Steifheit aus. Die Zeitskalen dieser Reaktionen reichen vom Nanosekundenbereich bei einigen Radikalreaktionen bis zu einigen Sekunden bei der  $\text{NO}_x$ -Bildung. Wegen des immensen Rechenzeitbedarfs ist es in absehbarer Zeit nicht möglich, komplexe dreidimensionale Probleme mit detaillierter Chemie zu simulieren. Der chemische Mechanismus muß dazu drastisch reduziert werden; oft können nicht mehr als zwei oder drei Variablen zur Beschreibung der chemischen Vorgänge verwendet werden, wenn die Simulation in einer vertretbaren Zeit durchgeführt werden soll. Speziell bei turbulenten Systemen, bei denen die Presumed-PDF-Methode zur Berechnung des chemischen Mittelwertes verwendet wird, ist diese Anzahl stark eingeschränkt.

Es müssen Methoden entwickelt werden, chemische Mechanismen so zu reduzieren, daß die Reaktionsgeschwindigkeit und die Wärmefreisetzung richtig vorhergesagt werden. Zudem spielen aber gerade Radikalkonzentrationen wie z. B. die der O-Atome eine zentrale Rolle bei der Schadstoffbildung.

Ein klassischer Ansatz zur Reduktion eines chemischen Mechanismus ist die Verwendung von Quasistationaritätsannahmen für Spezies oder die Annahme von partiellen Gleichgewichten von Reaktionen. Bei der Quasistationaritätsannahme wird ausgenutzt, daß für einige Spezies (besonders für Radikale) die Geschwindigkeiten für die Bildung und für den Abbau sehr hoch sind, der Nettoquellterm ist dagegen verhältnismäßig klein. Bei der Quasistationaritätsannahme wird dieser Nettoquellterm gleich Null gesetzt.

Bei der Verwendung von partiellen Gleichgewichten betrachtet man Reaktionen, für die sowohl Hin- als auch Rückreaktion sehr schnell ablaufen, so daß sich schnell ein partielles Gleichgewicht einstellt, bei dem dann Hin- und Rückreaktion gleich schnell ablaufen. Zur Bestimmung dieser Gleichgewichtskonzentrationen muß dann nur ein algebraisches System gelöst werden [2,3]. Diese Annahme ist aber meist nur für bestimmte Reaktionsbedingungen gültig. Sie ist von der Temperatur, der Stöchiometrie, usw. abhängig. Betrachtet man zum Beispiel stöchiometrische  $H_2$ -Luft-Flammen, so zeigt ein Vergleich einer Simulation mit Hilfe eines detaillierten Reaktionsmechanismus mit einer Berechnung unter Verwendung eines partiellen Gleichgewichts, daß nur für hohe Temperaturen eine gute Übereinstimmung erzielt wird [1].

In den meisten Verbrennungssystemen herrschen aber sehr verschiedene Bedingungen. Es gibt Bereiche, die noch unverbrannt sind, und sehr heiße Bereiche, in denen die Verbrennung fast abgeschlossen ist. Bei nicht-vorgemischeten Flammen gibt es zusätzlich noch Bereiche mit verschiedener Stöchiometrie, die sich in ihrem chemischen Verhalten deutlich unterscheiden. Darum sind diese klassischen Verfahren zur Reduktion chemischer Mechanismen nur eingeschränkt nutzbar, da globale Annahmen für die Quasistationarität von Spezies und Einführung von partiellen Gleichgewichten in einigen Bereichen das chemische System nur fehlerhaft beschreiben können.

Es sind also Verfahren zur Reduktion des detaillierten Mechanismus nötig, die das Verhalten des chemischen Systems lokal untersuchen und eine entsprechende Reduktion vornehmen.

Ein Ansatz ist die Verwendung von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten zur Reduktion eines chemischen Mechanismus. Bei diesem Verfahren werden die Zeitskalen der chemischen Reaktionen lokal untersucht und angenommen, daß das System durch die langsamen Zeitskalen beschrieben werden kann. Prinzipiell kann dieses Verfahren auf einen beliebigen Mechanismus bei einer beliebigen Stöchiometrie angewendet werden, sofern sich das Verbrennungssystem durch einige wenige zeitbestimmende Prozesse beschreiben läßt. Diese von Maas und Pope entwickelte Methode [27,28] wurde in dieser Arbeit dazu verwendet, chemische Reaktionsmechanismen von höheren Kohlenwasserstoffen zu reduzieren und Simulationen in homogenen Systemen und in laminaren Flammen durchzuführen.

# Kapitel 2

## Chemische Reaktionskinetik

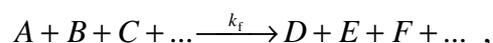
### 2.1 Einleitung

In dieser Arbeit werden die niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten des chemischen Zustandsraumes (engl. Intrinsic Low-Dimensioinal Mannifolds) verwendet, um einen detaillierten chemischen Mechanismus zu reduzieren. Daher soll als erstes die chemische Reaktionskinetik beschrieben werden, die als Grundlage für den reduzierten Mechanismus dient.

Mit Hilfe der thermodynamischen Gesetze kann das Gleichgewicht eines chemischen Reaktionssystems bestimmt werden. Da aber die Geschwindigkeit der chemischen Reaktionen in den meisten Fällen vergleichbar ist mit der der physikalischen Transportprozesse wie Konvektion, Diffusion usw. ist eine detaillierte Beschreibung der ablaufenden chemischen Reaktionen notwendig.

### 2.2 Reaktionsgeschwindigkeit

Unter der Reaktionsgeschwindigkeit versteht man die Geschwindigkeit, mit der ein an der Reaktion beteiligter Stoff gebildet oder abgebaut wird. Betrachtet man die Reaktion



so ist die Reaktionsgeschwindigkeit der Spezies  $A$  durch

$$\frac{d[A]}{dt} = -k_f [A]^a [B]^b [C]^c \dots \quad 2.1$$

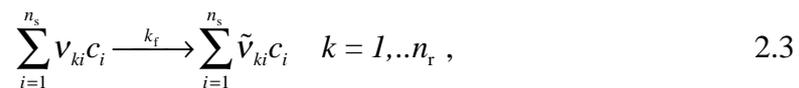
gegeben. Dabei sind  $a, b, c$  die Reaktionsordnungen bezüglich der Spezies und  $k_f$  ist der Geschwindigkeitskoeffizient der Reaktion. Der Geschwindigkeitskoeffizient  $k_f$  kann mit Hilfe des modifizierten Arrhenius-Ansatzes berechnet werden:

$$k_f = AT^b \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right). \quad 2.2$$

$A$ ,  $b$  und  $E_a$  sind für die Reaktion typische Parameter.

## 2.3 Elementarreaktionen

Unter einer Elementarreaktion versteht man eine Reaktion, die auf molekularer Ebene so abläuft, wie es die Reaktionsgleichung beschreibt [4]. Im Gegensatz dazu können bei zusammengesetzten Reaktionen noch zusätzliche Zwischenprodukte auftreten, die in der Reaktionsgleichung nicht auftauchen. Bei solchen komplexen Reaktionen sind die Reaktionsordnungen  $a$ ,  $b$ ,  $c$  im Allgemeinen nicht ganzzahlig. Sie sind von den Versuchsbedingungen abhängig und können sich im Verlauf der Reaktion ändern. Daher ist es sinnvoll, Elementarreaktionen zur Beschreibung eines chemischen Systems zu verwenden. Prinzipiell kann jede komplexe Reaktion durch eine Überlagerung von Elementarreaktionen beschrieben werden. Bei ihnen sind die Reaktionsordnungen immer konstant und entsprechen gerade den Reaktionsmolekularitäten. Liegt ein chemisches System mit  $n_r$  Reaktionen und  $n_s$  Spezies vor,



so ergibt sich die Reaktionsgeschwindigkeit der  $i$ -ten Spezies aus

$$\frac{dc_i}{dt} = \sum_{k=1}^{n_r} -k_f (\tilde{\nu}_{ki} - \nu_{ki}) \prod_{i=1}^{n_s} c_i^{n_{ki}}. \quad 2.4$$

## 2.4 Rückreaktionen

Im chemischen Gleichgewicht laufen Hin- und Rückreaktion gleich schnell ab. Für die  $k$ -te Reaktion gilt also :

$$-k_f (\tilde{\nu}_{ki} - \nu_{ki}) \prod_{i=1}^{n_s} c_i^{\nu_{ki}} = k_r (\nu_{ki} - \tilde{\nu}_{ki}) \prod_{i=1}^{n_s} c_i^{\tilde{\nu}_{ki}}. \quad 2.5$$

Für die Gleichgewichtskonstante  $K_C(T)$  ergibt sich

$$\begin{aligned}
K_C &= \frac{k_f}{k_r} \\
&= \prod_{i=1}^{n_S} C_i^{\tilde{v}_{ik} - v_{ik}} .
\end{aligned}
\tag{2.6}$$

Aus thermodynamischen Überlegungen ergibt sich für die Gleichgewichtskonstante in Abhängigkeit von der Freien Energie der Reaktion  $\Delta_R F$

$$K_C = \exp\left(\frac{-\Delta_R F}{RT}\right) .
\tag{2.7}$$

Mit Hilfe dieser Beziehung wird der Geschwindigkeitskoeffizient aus der Gleichgewichtskonstanten bestimmt. In einigen Fällen sind die verfügbaren thermodynamischen Daten nur sehr ungenau bekannt. Dann ist es sinnvoll, experimentell bestimmte Geschwindigkeitskoeffizienten sowohl für die Hinreaktion als auch für die Rückreaktion zu verwenden.

## 2.5 Enthalpie eines chemisch-reagierenden Gemisches

In vielen chemischen Systemen ist es einfacher, eine Erhaltungsgleichung für die Enthalpie aufzustellen statt für die Temperatur. Daher soll im Folgenden die Definition der Enthalpie angegeben werden und gezeigt werden, wie sie berechnet wurde.

Die Enthalpie  $H$  ist definiert als Summe aus der Inneren Energie  $U$  und dem Produkt aus dem Volumen  $V$  und dem thermodynamischen Druck  $p$ ,

$$H = U + pV .
\tag{2.8}$$

Für die Änderung der Enthalpie  $dH$  erhält man mit Hilfe des 1. Hauptsatzes der Thermodynamik

$$dH = \delta Q + dpV .
\tag{2.9}$$

Daher entspricht bei isobaren Bedingungen die zugeführte Wärmeenergie der Enthalpieänderung

$$\begin{aligned}
dH &= \delta Q \\
&= c_p dT .
\end{aligned}
\tag{2.10}$$

Die Enthalpie  $H$  ergibt sich als Summe der spezifischen Enthalpien  $h_i$ :

$$H = \sum_{i=1}^{n_s} \rho w_i h_i . \quad 2.11$$

Dabei ist  $\rho$  die Dichte und  $w_i$  ist der Massenbruch der  $i$ -ten Spezies. Die spezifischen Enthalpien  $h_i(T)$  ergeben sich aus

$$h_i(T) = h_i^{298\text{K}} + \int_{298\text{K}}^T c_{pi}(T) dT . \quad 2.12$$

Für die spezifischen Wärmekapazitäten  $c_{pi}$  wurde ein Polynomansatz 4. Grades verwendet:

$$c_{pi}(T) = a_1 + a_2 T + a_3 T^2 + a_4 T^3 + a_5 T^4 . \quad 2.13$$

Die die Koeffizienten  $a_i$  und andere thermodynamischen Daten stammen aus einer Datenbank des IWR, die auf Werten beruht, die aus der Datenbank der Sandia National Laboratories [5] und der Datenbank von Burcat [6] stammen. Einige zusätzliche Werte dieser Datenbank wurden mit Hilfe der Additivitätsregeln von Benson [7] berechnet.

# Kapitel 3

## Theoretische Beschreibung der ILDM-Methode

### 3.1 Homogene Reaktionssysteme

Als erstes werden in diesem Kapitel einige grundlegende Eigenschaften homogener Systeme beschrieben. Der Vorteil bei der Betrachtung von homogenen Reaktionssystemen ist, daß bei ihnen eine Änderung der Spezieskonzentrationen nur aufgrund der chemischen Kinetik erfolgt; physikalische Transportprozesse brauchen nicht berücksichtigt werden. Dies vereinfacht die mathematische Beschreibung stark. Der Einfluß von physikalischen Transportprozessen wie Diffusion und Konvektion auf das chemische System wird dann im Abschnitt 3.9 detailliert untersucht.

Ein Zustand in einem räumlich homogenen System ist eindeutig bestimmt durch die Temperatur  $T$ , den Druck  $p$  und die Speziesmassenbrüche  $w_i$ , wenn eine Zustandsgleichung zu Hilfe genommen wird. Statt der Temperatur kann auch die Enthalpie  $H$  und statt des Drucks auch die Dichte  $\rho$  zur Beschreibung des Systems verwendet werden. Je nach Reaktionsbedingungen kann durch geschickte Wahl der Variablen das Gleichungssystem vereinfacht werden. So kann man bei adiabatischen Bedingungen ausnutzen, daß die Enthalpie in dem homogenen System konstant ist. In den in der Arbeit verwendeten homogenen Systemen wird in der Regel von adiabatischen und isobaren Bedingungen ausgegangen. Für sie gelten die Erhaltungsgleichungen

$$\begin{aligned}\frac{dH}{dt} &= 0, \\ \frac{dp}{dt} &= 0, \\ \frac{dw_i}{dt} &= S_i(\vec{w}) \quad i = 1, \dots, n_s.\end{aligned}\tag{3.1}$$

Hierbei wurde mit  $S_i$  der chemische Quellterm der  $i$ -ten Spezies bezeichnet. Die ILDM-Methode ist allerdings keineswegs nur für solche adiabatischen und isobaren Systeme möglich. Analoge Betrachtungen können auch für isotherme und isochore Systeme angestellt wer-

den. Für die folgenden Betrachtungen ist es sinnvoll den Begriff des Zustandsvektors einzuführen:

$$\vec{x} = (H, p, w_1, \dots, w_{n_s}) . \quad 3.2$$

Auch hier kann wieder die Enthalpie durch die Temperatur und der Druck durch die Dichte ersetzt werden. Damit können die Erhaltungsgleichungen auch als

$$\dot{\vec{x}} = \vec{S}(\vec{x}) \quad 3.3$$

geschrieben werden.

Bei der Lösung der Erhaltungsgleichungen und vor allem bei der Lösung der Gleichungen für die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit (siehe 3.4) ist darauf zu achten, daß nur erlaubte Zustände für die physikalischen Größen angenommen werden:

$$\begin{aligned} T &> 0 , \\ p &> 0 , \\ \rho &> 0 , \\ 0 &\leq w_i \leq 1 , \\ \sum_{i=1}^{n_s} w_i &= 1 . \end{aligned} \quad 3.4$$

Weiter ist zu berücksichtigen, daß bei einer chemischen Reaktion keine Elementumwandlung stattfindet. Darum sind die Element-Molzahlen  $\chi_i^e$  eine Erhaltungsgröße bei geschlossenen räumlich homogenen chemischen Systemen. Durch die Einführung von Elementvektoren kann dies leicht mathematisch formuliert werden [8].

Ist  $\mu_{ij}$  die Anzahl der Atome des Elements  $i$  in der Spezies  $j$  und sind  $\Phi_i$  die spezifischen Molzahlen der Spezies, so ergibt sich:

$$\chi_i^e = \sum_{j=1}^{n_s} \mu_{ij} \Phi_j . \quad 3.5$$

Bezeichnen  $v_{ij}$  die stöchiometrischen Koeffizienten der Reaktion, so ergibt sich für den Reaktionsvektor

$$\begin{aligned} v_{ij}^r &= (v_{ij} - \tilde{v}_{ij}) \\ \vec{v}_i^r \vec{\mu}_i^T &= 0 . \end{aligned} \quad 3.6$$

Das heißt, der Element- und der Reaktionsvektor stehen immer senkrecht aufeinander, sofern es sich um ein homogenes abgeschlossenes System handelt.

## 3.2 Intrinsische niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeiten

Untersucht man räumlich homogene abgeschlossene Systeme für z.B. die Methan-Oxidation, so sieht man, daß das System nach einigen  $\mu\text{s}$  auf eine eindimensionalen Mannigfaltigkeit relaxiert ist [8,9]. Das bedeutet, daß das gesamte Verbrennungssystem bei gegebener Enthalpie, Druck und Gemischzusammenstellung durch eine Variable beschrieben werden kann. Dieses Verhalten kann zur Reduktion eines chemischen Systems verwendet werden. Man kann davon ausgehen, daß das chemische System nach einer kurzen Zeitspanne auf eine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert ist. Danach findet die gesamte chemische Kinetik auf dieser Mannigfaltigkeit statt. Das gesamte System kann dann mit wenigen Variablen beschrieben werden. Wird der Zustand von der Mannigfaltigkeit wegbewegt, z.B. durch physikalische Transportprozesse bei inhomogenen Systemen, so sorgen die schnellen Zeitskalen, von denen angenommen wird, daß sie schon relaxiert sind, dafür, daß das System auf die Mannigfaltigkeit zurück bewegt wird. Voraussetzung dafür ist allerdings, daß die Zeitskalen der physikalischen Prozesse wesentlich größer sind als die Zeitskalen der relaxierten Prozesse. In den folgenden Abschnitten soll dieses Grundprinzip der ILDM-Methode mathematisch formuliert werden und die Gleichungen angegeben werden, mit denen die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit bestimmt werden kann.

## 3.3 Eigenwertanalyse chemischer Systeme

Betrachtet man ein räumlich homogenes abgeschlossenes System, so sind die Erhaltungsgleichungen durch

$$\frac{d\vec{x}}{dt} = \vec{S}(\vec{x}) \quad \text{mit } \vec{x}(t=0) = \vec{x}_0 \quad 3.7$$

gegeben. Wie im Kapitel 2 beschrieben, setzt sich der chemische Quellterm aus einer Linearkombination von Termen zusammen, die aus einem Produkt der Spezieskonzentrationen und einem Koeffizienten bestehen, der mit der Arrhenius-Formel modelliert wird. Daher kann davon ausgegangen werden, daß die Ableitungen des Quellterms nach der Zeit und den einzelnen Speziesmassenbrüchen existieren. Entwickelt man um die Stelle  $t = 0$ , so erhält man

$$\vec{S}(\vec{x}) = \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\vec{x}_0} (\vec{x} - \vec{x}_0) + \mathcal{O}((\vec{x} - \vec{x}_0)^2) \quad 3.8$$

mit der Jakobimatrix  $\mathbf{J}_s^{\vec{x}_0}$  an der Stelle  $\vec{x}_0$ ,

$$\mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} = \begin{pmatrix} \frac{\partial S_1(\bar{x}_0)}{\partial x_1} & \frac{\partial S_1(\bar{x}_0)}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial S_1(\bar{x}_0)}{\partial x_{n_s+2}} \\ \frac{\partial S_2(\bar{x}_0)}{\partial x_1} & \frac{\partial S_2(\bar{x}_0)}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial S_2(\bar{x}_0)}{\partial x_{n_s+2}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial S_{n_s+2}(\bar{x}_0)}{\partial x_1} & \frac{\partial S_{n_s+2}(\bar{x}_0)}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial S_{n_s+2}(\bar{x}_0)}{\partial x_{n_s+2}} \end{pmatrix}.$$

Der Term  $O((\bar{x} - \bar{x}_0)^2)$  enthält dabei Terme zweiter oder höherer Ordnung. Betrachte man eine hinreichend kleine zeitliche Änderung  $\varepsilon$ , so können diese Terme vernachlässigt werden.

Für eine kleine Störung des System ergibt sich

$$\frac{\partial \bar{x}_\varepsilon}{\partial t} = \bar{S}(x_0) + \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} (\bar{x}_\varepsilon - \bar{x}_0). \quad 3.9$$

Betrachtet man die Abweichung des Systems  $\bar{\varepsilon} = \bar{x}_\varepsilon - \bar{x}$ , so ergibt sich

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{x}_\varepsilon}{\partial t} - \frac{\partial \bar{x}}{\partial t} &= \left( \bar{S}(\bar{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} (\bar{x}_\varepsilon - \bar{x}_0) \right) - \left( \bar{S}(\bar{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} (\bar{x} - \bar{x}_0) \right) \\ \frac{\partial (\bar{x}_\varepsilon - \bar{x})}{\partial t} &= \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} (\bar{x}_\varepsilon - \bar{x}) \\ \frac{\partial \bar{\varepsilon}}{\partial t} &= \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} \bar{\varepsilon}. \end{aligned} \quad 3.10$$

Eine analytische Lösung dieser Differentialgleichung ist [10]

$$\bar{\varepsilon} = \exp(\mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} t) \bar{\varepsilon}_0 \quad \text{mit } \bar{\varepsilon}_0 = \bar{\varepsilon}(t=0). \quad 3.11$$

Es sei vorausgesetzt, daß sich die Jakobimatrix  $\mathbf{J}_s^{\bar{x}_0}$  diagonalisieren läßt. Dann existiert eine Transformationsmatrix  $\mathbf{U}$ , so daß

$$\mathbf{U} \mathbf{D} \mathbf{U}^{-1} = \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0}. \quad 3.12$$

$\mathbf{D}$  ist die Diagonalmatrix mit den Eigenwerten  $\lambda_i$  der Jakobimatrix auf der Diagonalen,  $\mathbf{U}$  ist die Transformationsmatrix mit den Eigenvektoren  $\bar{u}_i$  als Spaltenvektoren, d.h.

$$\mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} \bar{u}_i = \lambda_i \bar{u}_i. \quad 3.13$$

Durch Einsetzen in 3.11 ergibt sich

$$\bar{\varepsilon} = \exp(\mathbf{UDU}^{-1}t)\bar{\varepsilon}_0 . \quad 3.14$$

Aus der Definition der Exponentialfunktion und der Beziehung  $\mathbf{U}^{-1}\mathbf{U}=\mathbf{E}$  ergibt sich

$$\bar{\varepsilon} = \mathbf{U} \exp(\mathbf{Dt})\mathbf{U}^{-1}\bar{\varepsilon}_0 . \quad 3.15$$

Im Koordinatensystem mit der Basis der Eigenvektoren gilt

$$\begin{aligned} \mathbf{U}^{-1}\bar{\varepsilon} &= \mathbf{U}^{-1}\mathbf{U} \exp(\mathbf{Dt})\mathbf{U}^{-1}\bar{\varepsilon}_0 \\ \hat{\varepsilon} &= \exp(\mathbf{Dt})\hat{\varepsilon}_0 , \text{ d.h.} \\ \hat{\varepsilon}_i &= \hat{\varepsilon}_{0,i} \exp(\lambda_i t) . \end{aligned} \quad 3.16$$

Betrachtet man eine Störung im Koordinatensystem mit der Basis der Eigenvektoren, so ist

$$|\hat{\varepsilon}_i| = |\hat{\varepsilon}_{0,i}| \exp(\lambda_i^{\text{reell}} t) . \quad 3.17$$

Dieses Ergebnis erhält man auch ohne die Voraussetzung, daß sich die Jakobimatrix diagonalisieren läßt. Es lassen sich hierbei drei Fälle unterscheiden:

- $\lambda_i^{\text{reell}} > 0$ : Die Störung wächst mit der Zeit an und wird immer größer.
- $\lambda_i^{\text{reell}} = 0$ : Die Störung bleibt konstant.
- $\lambda_i^{\text{reell}} < 0$ : Die Störung klingt im Laufe der Zeit ab.

Untersuchungen in realen chemischen Systemen zeigen, daß keine oder nur sehr wenige der reellen Eigenwerte positiv sind. In diesem Fall nimmt eine Störung in Richtung dieses Eigenwertes kurzzeitig zu. Es ist aber zu berücksichtigen, daß diese Eigenwertanalyse nur lokal gilt, das heißt, die Eigenwerte können sich schon bei einer relativ kleinen Änderung des Zustandsvektors deutlich ändern. Normalerweise ist bei chemischen Systemen dieses Wachsen einer Störung lokal begrenzt.

Einige der Eigenwerte in einem chemischen System sind immer null, da zum Beispiel die Elementmassenbrüche eine Erhaltungsgröße bei chemischen Reaktionen sind. Die meisten Eigenwerte sind aber negativ, viele sogar mit einem großen Betrag. Eine Störung in Richtung dieser Eigenvektoren klingt demnach sehr schnell ab, und das System relaxiert auf eine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit. Diese Eigenschaft kann wie folgt genutzt werden, um eine Reduktion des chemischen Mechanismus vorzunehmen.

### 3.4 Mathematische Formulierung der ILDM-Methode

Betrachtet man wieder das homogenen Gleichungssystem für ein chemisches System bestehend aus  $n_s$  Spezies, so erhält man  $n = n_s + 2$  Gleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{d\bar{x}}{dt} &= \bar{S}(\bar{x}) \text{ mit der Linearisierung} \\ \frac{d\bar{x}}{dt} &= \bar{S}(\bar{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} (\bar{x} - \bar{x}_0). \end{aligned} \quad 3.18$$

Sei  $\bar{y} = \bar{x} - \bar{x}_0$ , so ergibt sich

$$\frac{\partial \bar{y}}{\partial t} = \bar{S}(\bar{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\bar{x}_0} \bar{y}. \quad 3.19$$

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, daß die Eigenwerte ein Maß dafür sind, wie schnell Prozesse ablaufen. Daher soll dieses Gleichungssystem in einem Koordinatensystem mit den verallgemeinerten Eigenvektoren der Jakobimatrix als Basis betrachtet werden.

Es kann gezeigt werden, daß immer eine Jordanzerlegung der Jakobimatrix existiert [11]. Sei  $\tilde{\mathbf{J}}$  eine Matrix in Jordanscher Normalform:

$$\tilde{\mathbf{J}} = \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{J}}_1 & & & \\ & \tilde{\mathbf{J}}_2 & & 0 \\ & & \ddots & \\ 0 & & & \tilde{\mathbf{J}}_m \end{pmatrix}. \quad 3.20$$

$\tilde{\mathbf{J}}_i$  sind dabei Jordanmatrizen. Für sie gilt:

- ◆ Sind alle Eigenwerte reell und nicht entartet, so sind die  $\tilde{\mathbf{J}}_i$  mit den Eigenwerten identisch. Die Jordansche Matrix ist dann eine Diagonalmatrix mit den Eigenwerten als Elemente auf der Diagonalen,

$$\tilde{\mathbf{J}} = \mathbf{D} = \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \lambda_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & \lambda_n \end{pmatrix}. \quad 3.21$$

- ◆ Sind die Eigenwerte  $\lambda_i, \lambda_{i+1}$  komplex konjugiert, aber nicht entartet, so gilt

$$\tilde{\mathbf{J}}_i = \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{J}}_{i,i} & \tilde{\mathbf{J}}_{i,i+1} \\ \tilde{\mathbf{J}}_{i+1,i} & \tilde{\mathbf{J}}_{i+1,i+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \lambda_i^{\text{reell}} & \lambda_i^{\text{im}} \\ -\lambda_i^{\text{im}} & \lambda_i^{\text{reell}} \end{pmatrix}. \quad 3.22$$

- ◆ Ist der Eigenwert  $\lambda_i$   $m$ -fach entartet, so ist

$$\tilde{\mathbf{J}}_i = \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{J}}_{i,i} & \tilde{\mathbf{J}}_{i,i+1} & \cdots & \tilde{\mathbf{J}}_{i,i+m-1} \\ \tilde{\mathbf{J}}_{i+1,i} & \tilde{\mathbf{J}}_{i+1,i+1} & \cdots & \tilde{\mathbf{J}}_{i+1,i+m-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \tilde{\mathbf{J}}_{i+m-1,i} & \tilde{\mathbf{J}}_{i+m-1,i+1} & \cdots & \tilde{\mathbf{J}}_{i+m-1,i+m-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \lambda_i & 1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \lambda_i & 1 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_i & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & \lambda_i \end{pmatrix}. \quad 3.23$$

- ◆ Komplexe und entartete Eigenwerte ergeben sich aus der Kombination der beiden Regeln.

Für komplexe und entartete Eigenwerte lassen sich sogenannte verallgemeinerte Eigenvektoren konstruieren, die voneinander linear unabhängig sind und damit als alternative Basis geeignet sind. Transformiert man Gleichung 3.18 in das Koordinatensystem mit den verallgemeinerten Eigenvektoren  $\vec{u}_1, \vec{u}_2, \dots, \vec{u}_n$  als Basis, so ist  $\tilde{\mathbf{J}} = \mathbf{U}^{-1} \mathbf{J} \mathbf{U}$  die Jakobimatrix in dieser neuen Basis. Der Vektor  $\vec{y}$  transformiert sich zu  $\vec{\tilde{y}} = \mathbf{U}^{-1} \vec{y}$ . Es ergibt sich:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{U} \vec{\tilde{y}}}{\partial t} &= \mathbf{U} \frac{\partial \vec{\tilde{y}}}{\partial t} \\ &= \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{J}_s^{\vec{x}_0} \mathbf{U} \vec{\tilde{y}}. \end{aligned} \quad 3.24$$

In der Transformationsmatrix stehen in den Spalten die Eigenvektoren der Jakobimatrix:  $\mathbf{U} = (\vec{u}_1, \vec{u}_2, \dots, \vec{u}_n)$ . Die Multiplikation mit der inversen Transformationsmatrix  $\mathbf{U}^{-1}$  von links liefert

$$\begin{aligned} \frac{\partial \vec{\tilde{y}}}{\partial t} &= \mathbf{U}^{-1} \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{U}^{-1} \mathbf{J}_s^{\vec{x}_0} \mathbf{U} \vec{\tilde{y}} \\ \frac{\partial \vec{\tilde{y}}}{\partial t} &= \mathbf{U}^{-1} \vec{S}(\vec{x}_0) + \tilde{\mathbf{J}} \vec{\tilde{y}}. \end{aligned} \quad 3.25$$

Die Eigenwerte seien nun nach der Größe geordnet. Es soll erfüllt sein:

$$\begin{aligned} \lambda_i^{\text{reell}} &\geq \lambda_{i+1}^{\text{reell}} \quad i = 1, n-1 \\ \lambda_i^{\text{reell}} = \lambda_{i+1}^{\text{reell}} &\Rightarrow \lambda_i^{\text{im}} \geq \lambda_{i+1}^{\text{im}}. \end{aligned} \quad 3.26$$

Im Abschnitt 3.3 wurde gezeigt, daß der Realteil der Eigenvektoren der Jakobimatrix ein Maß für die Geschwindigkeit eines Prozesses ist. Um die folgenden Rechnungen zu vereinfachen, soll davon ausgegangen werden, daß die Eigenwerte reell und nicht entartet sind. Man spaltet nun das Gleichungssystem 3.25 in zwei Untersysteme auf:

$$\begin{aligned}\frac{\partial \vec{y}_L}{\partial t} &= \mathbf{U}_L^{-1} \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{D}_L \vec{y}_L, \\ \frac{\partial \vec{y}_S}{\partial t} &= \mathbf{U}_S^{-1} \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{D}_S \vec{y}_S, \\ \mathbf{U}_L &= (\vec{u}_1, \vec{u}_2, \dots, \vec{u}_m) \text{ und } \mathbf{U}_S = (\vec{u}_{m+1}, \vec{u}_{m+2}, \dots, \vec{u}_n).\end{aligned}\quad 3.27$$

Die inverse Transformationsmatrix  $\mathbf{U}^{-1}$  ist

$$\mathbf{U}^{-1} = \begin{pmatrix} \vec{u}_1^{-1} \\ \vec{u}_2^{-1} \\ \vdots \\ \vec{u}_n^{-1} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{U}_L^{-1} = \begin{pmatrix} \vec{u}_1^{-1} \\ \vec{u}_2^{-1} \\ \vdots \\ \vec{u}_m^{-1} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{U}_S^{-1} = \begin{pmatrix} \vec{u}_{m+1}^{-1} \\ \vec{u}_{m+2}^{-1} \\ \vdots \\ \vec{u}_n^{-1} \end{pmatrix}.\quad 3.28$$

$\vec{u}_i^{-1}$  sind dabei die linken Eigenvektoren. Der Index L steht dabei für langsame Prozesse, der Index S für schnelle Relaxationsvorgänge. Die Diagonalmatrix ist in zwei Untermatrizen unterteilt,

$$\mathbf{D}_L = \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \lambda_2 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & \lambda_m \end{pmatrix}, \quad \mathbf{D}_S = \begin{pmatrix} \lambda_{m+1} & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \lambda_{m+2} & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & \lambda_n \end{pmatrix}.\quad 3.29$$

In der Matrix  $\mathbf{D}_L$  stehen die Eigenwerte, die langsame Prozesse im Unterraum  $\mathbf{U}_L$  beschreiben, in der Matrix  $\mathbf{D}_S$  stehen schnelle Relaxationsprozesse im Unterraum  $\mathbf{U}_S$ . In den meisten chemischen Systemen gibt es sehr viele schnelle Prozesse, die nach einer kurzen Zeit auf eine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert sind. Danach findet in einem abgeschlossenen homogenen System die gesamte Reaktion entlang dieser Mannigfaltigkeit ab, mathematisch formuliert:

$$\mathbf{U}_S^{-1} \vec{S}(\vec{x}) = 0.\quad 3.30$$

Das heißt, die Projektion des chemischen Quellterms auf den Unterraum der schnellen Zeitskalen verschwindet. Mit dieser Voraussetzung vereinfacht sich Gleichung 3.27 zu

$$\frac{\partial \vec{y}_L}{\partial t} = \mathbf{U}_L^{-1} \vec{S}(\vec{x}_0) + \mathbf{D}_L \vec{y}_L, \quad 3.31$$

$$\frac{\partial \vec{y}_S}{\partial t} = \mathbf{D}_S \vec{y}_S. \quad 3.32$$

Da sich die schnellen Prozesse in einem lokalen Gleichgewicht befinden sollen, gilt

$$\frac{\partial \vec{y}_S}{\partial t} = 0. \quad 3.33$$

Aus der Definition von  $\vec{y}(t=0) = 0$  folgt

$$\vec{y}_S(t) = 0. \quad 3.34$$

Die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit ist durch die Gleichung 3.30 eindeutig bestimmt. Zusätzlich müssen noch die Gleichungen 3.4 erfüllt sein, da nur Lösungen sinnvoll sind, die diese für alle chemischen Systeme geltenden Regeln erfüllen. Alle Punkte im Zustandsraum, die diese Bedingungen und 3.30 erfüllen, sind ein Bestandteil der ILDM. Um die ILDM zu bestimmen, muß also der Lösungsraum dieser Gleichungen gefunden werden.

Dabei muß berücksichtigt werden, daß die Jakobimatrix und damit auch die Transformationsmatrix  $\mathbf{U}$  Funktionen des Zustandsvektors sind. Aufgrund der großen Steifheit und der starken Nichtlinearität chemischer Systeme ist die numerische Lösung allerdings recht aufwendig.

### 3.5 Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit

Gleichung 3.28 definiert einen  $m$ -dimensionalen Unterraum des  $n$ -dimensionalen Zustandsraums. Bei der Wahl von  $m$  ist folgendes zu beachten: Sei  $n_e$  die Anzahl der chemischen Elemente, die in dem betrachteten System vorhanden sind. Dann existieren aufgrund der Elementerhaltung  $n_e$  Erhaltungsgrößen. Bei Annahme von adiabatischen und isobaren Bedingungen sind die Enthalpie und der Druck weitere Parameter, die sich nicht ändern. Daher sind  $n_e+2$  Eigenwerte 0.  $m$  muß also größer als  $n_e+2$  gewählt werden, da sonst die Gleichung 3.30 physikalisch sinnlos ist.

Wählt man  $m = n_e+2$ , so ist die Mannigfaltigkeit durch die Elementmassenbrüche, die Enthalpie und den Druck eindeutig bestimmt. Das chemische Gleichgewicht bei vorgegebenen Erhaltungsgrößen ist der einzige Punkt auf dieser niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit.

Es wird dann davon ausgegangen, daß sich das chemische System immer im Gleichgewicht befindet, was einer „Null-Schritt-Chemie“ entspricht.

Wählt man  $m > n_s + 2$ , so erhält man  $n_r = m - (n_e + 2)$  Freiheitsgrade, die die Dynamik des chemischen Systems beschreiben. Diese Parameter werden im Folgenden als Reaktionsfortschrittsvariablen bezeichnet. Je größer man  $n_r$  wählt, desto detaillierter wird das chemische System beschrieben, nur noch sehr schnelle Prozesse werden als relaxiert angesehen.

Im Extremfall  $m = n$  ist die „niedrig-dimensionale“ Mannigfaltigkeit gerade der gesamte Zustandsraum, und es werden keine Prozesse als relaxiert angenommen. Es wird die gesamte Dynamik des chemischen Systems berücksichtigt, und es findet keine Reduktion des chemischen Mechanismus statt.

Bei der Wahl der Anzahl der Reaktionsfortschrittsvariablen für ein konkretes physikalisches Problem muß als erstes geprüft werden, wie viele Fortschrittsvariablen maximal verwendet werden können. Zum einen muß im CFD-Programm, in dem die Chemie mit Hilfe der ILDM-Methode beschrieben wird, für jede Reaktionsfortschrittsvariable eine Erhaltungsgleichung gelöst werden. Hinzu kommen eventuell noch Erhaltungsgleichungen für die Varianzen der Fortschrittsvariablen. Bei dreidimensionalen Simulationen oder bei turbulenter Verbrennung ist es meist nicht möglich, mehr als zwei Reaktionsfortschrittsvariablen zu verwenden, da sonst der Aufwand zum Lösen der Navier-Stokes-Gleichungen zu groß wird.

Die Bestimmung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit ist numerisch sehr aufwendig. Daher werden die berechneten Werte in Tabellen gespeichert. Jede Fortschrittsvariable ist dabei eine weitere Dimension in der Tabelle. Deshalb schränken der benötigte Speicherplatz und die benötigte Rechenzeit zur Erzeugung der Tabelle die Anzahl der Fortschrittsvariablen stark ein. Obwohl mit der In-Situ-Generierung der Tabelle (siehe Abschnitt 5.6) und mit der Parallelisierung des Algorithmus zu Tabellenerzeugung (Kapitel 7) deutliche Fortschritte erzielt werden konnten, ist es meist nicht praktikabel, mehr als drei Fortschrittsvariablen zu verwenden. Auf der anderen Seite darf die Anzahl der Fortschrittsvariablen nicht zu klein gewählt werden. Je weniger Zeitskalen berücksichtigt werden, umso stärker wird die chemische Dynamik vereinfacht. Gibt man zum Beispiel in einem homogenen System Startbedingungen vor, die nicht auf der ILDM liegen, so relaxiert das System auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit. Je mehr Fortschrittsvariablen verwendet werden, umso besser kann der Startpunkt mit Hilfe der ILDM-Methode beschrieben werden und umso schneller wird der Zustand auf die ILDM relaxieren, da bei mehr Fortschrittsvariablen nur schnellere Prozesse als relaxiert angenommen werden (siehe Abb. 9.2).

Auch inhomogene Systeme können mit der ILDM-Methode beschrieben werden (Abschnitt 3.9). Dabei ist allerdings darauf zu achten, daß die Zeitskalen der physikalischen Prozesse deutlich größer sind als die langsamsten Zeitskalen der als relaxiert angenommenen Prozesse.

Nur dann ist gewährleistet, daß ein relaxierter Zustand nicht durch physikalische Transportprozesse von der Mannigfaltigkeit wegbewegt wird. Je weniger Fortschrittsvariablen verwendet werden, umso weniger ist diese Bedingung erfüllt. Dies kann dazu führen, daß das reale System nur unzureichend beschrieben werden kann und die Simulationsergebnisse deutlich von den Ergebnissen bei der Verwendung des detaillierten Mechanismus abweichen (Kapitel 10). Bei der Verwendung der ILDM-Methode muß also bei der Wahl der Anzahl der

Fortschrittsvariablen ein Kompromiß zwischen diesen gegensätzlichen Anforderungen gefunden werden. Die Jakobimatrix und damit auch die zugehörigen Eigenwerte sind stark vom Ort im Zustandsraum abhängig. Daher ändern sich normalerweise die betrachteten Zeitskalen je nach Reaktionsbedingungen und je nach Reaktionsfortschritt. Daher ist es eigentlich naheliegend, die Anzahl der Fortschrittsvariablen variabel zu halten und nur dort, wo es nötig ist, viele Fortschrittsvariablen zu verwenden. Dies würde aber bedeuten, daß im CFD-Programm eine unterschiedliche Anzahl von Erhaltungsgleichungen zu lösen wäre, was meist nicht praktikabel ist. Ein möglicher Lösungsansatz für dieses Problem wird in Kapitel 8 vorgestellt.

## 3.6 Parametrisierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit

### 3.6.1 Notwendige Eigenschaften der Parametrisierungsvariablen

Nachdem detailliert die Probleme bei der Wahl der Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit diskutiert wurden, soll jetzt auf die Parametrisierung der Mannigfaltigkeit eingegangen werden.

Durch Gleichung 3.30 ist die  $m$ -dimensionale Mannigfaltigkeit bestimmt. Will man dagegen einen einzelnen Punkt auf der ILDM spezifizieren, so müssen  $\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m$  Parameter angegeben werden. Mit Hilfe einer geeigneten Parametrisierungsmatrix  $P$  ergibt sich mit

$$P\bar{x} = \bar{\theta} \quad 3.35$$

eine eindeutige Lösung des Gleichungssystems.

Ein Satz von Variablen  $(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m)$  ist nur dann zur Parametrisierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit geeignet, wenn eine eindeutige Zuordnung zwischen Variablen und Mannigfaltigkeit existiert, d.h. jedem Vektor  $(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m)$  ist genau ein Punkt auf der Mannigfaltigkeit zugeordnet, und jedem Punkt auf der Mannigfaltigkeit kann ein  $(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m)$  zugeordnet werden (siehe Abbildung 3.1). Es ist aber nicht nötig, daß für jedes  $(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m)$  auch ein Punkt auf der Mannigfaltigkeit existiert.

Die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit soll zur Beschreibung der Chemie in Verbrennungssystemen genutzt werden. Daher ist es sinnvoll, die Parametrisierungsvariablen so zu wählen, daß für sie Erhaltungsgleichungen analog zu den Navier-Stokes-Gleichungen aufgestellt werden können, mitsamt den dafür benötigten Konstanten. In diesem Fall besteht die Möglichkeit, in einem CFD-Programm Erhaltungsgleichungen für diese Parameter zu lösen. Die übrigen physikalischen Größen wie zum Beispiel die Dichte und die Spezieskonzentrationen sind Funktionen dieser Variablen und können mit Hilfe der ILDM bestimmt werden.

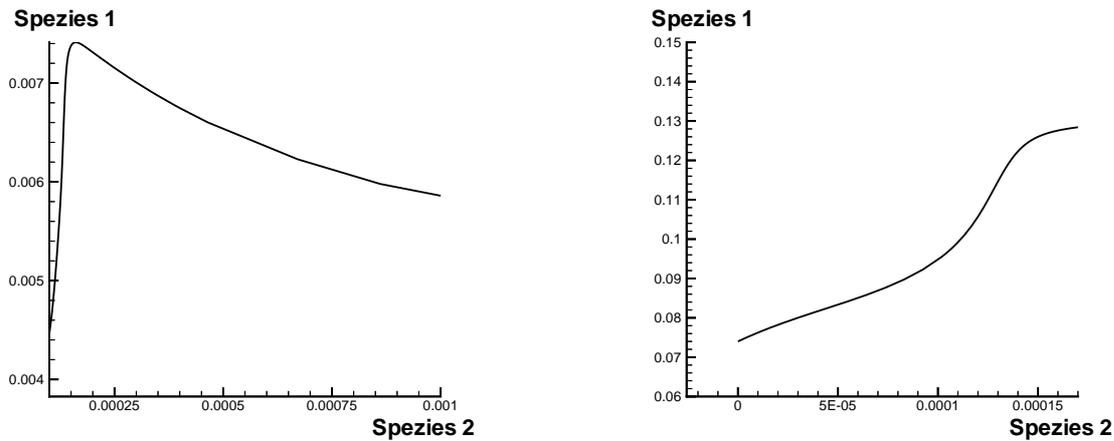


Abbildung 3.1 Testsystem bestehend aus 3 Spezies. Es ist eine 1-dimensionale Mannigfaltigkeit eingezeichnet. Links kann die Spezies 1 nicht zur Parametrisierung verwendet werden, da einem Speziesmassenbruch im Bereich 0,06-0,075 mehrere Punkte auf der Mannigfaltigkeit zugeordnet sind. Im rechten Bild ist dagegen eine eindeutige Beziehung gegeben und die 1. Spezies könnte als Parameter verwendet werden.

### 3.6.2 Verwendete Parametrisierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit

Die vorangegangenen Überlegungen legen es nahe, nach physikalischen Größen zu suchen, die diese Bedingungen erfüllen. Bei adiabatischen und isobaren Bedingungen sind die Enthalpie und der Druck Erhaltungsgrößen. Daher können sie problemlos als Parameter verwendet werden. Dasselbe gilt für die Elementmassenbrüche, da auch sie in einer chemischen Reaktion erhalten bleiben. Es müssen also nur noch für die Reaktionsfortschrittsvariablen geeignete Variablen gefunden werden, die die Mannigfaltigkeit parametrisieren können.

Ein häufig gewählter Ansatz ist, die Verwendung von Speziesmassenbrüchen als Fortschrittsvariablen, da für sie problemlos Erhaltungsgleichungen, Randbedingungen etc. aufgestellt werden können. Es gibt aber nur wenige Spezies, die die oben genannten Anforderungen für den gesamten Zustandsraum erfüllen. Zudem ist zu berücksichtigen, daß die Forderung nach eindeutiger Parametrisierung der Mannigfaltigkeit nur bedingt ausreichend ist. Betrachtet man die eindimensionale Mannigfaltigkeit aus Abb. 3.2, so sieht man daß die 1. Spezies zwar in der Lage ist, die eindimensionale Mannigfaltigkeit eindeutig zu parametrisieren, doch für Konzentrationen von ca. 0,14 bewirkt schon eine sehr kleine Änderung der Spezieskonzentration, daß eine Projektion auf einen ganz anderen Bereich der Mannigfaltigkeit erfolgt. Bei der Lösung der Gleichungen zur Bestimmung der ILDM kann dies zu numerischen Problemen führen.

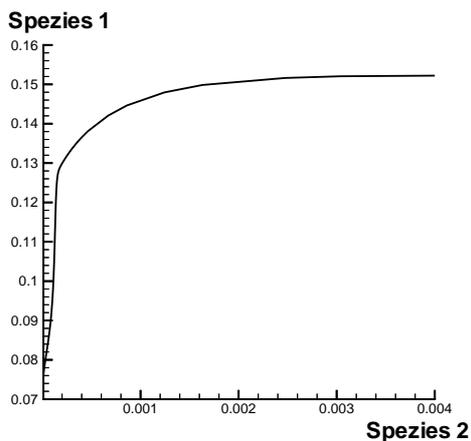


Abbildung 3.2 Testsystem bestehend aus 3 Spezies. Es ist eine 1-dimensionale Mannigfaltigkeit eingezeichnet. Die Parametrisierung der Mannigfaltigkeit mit Hilfe der Spezies 1 kann zu numerischen Schwierigkeiten führen.

Außerdem müßte die Fortschrittsvariable in diesem Bereich sehr fein tabelliert werden, während in anderen Bereichen ein relativ grobes Gitter ausreicht. Ein Gitter mit einer großen Verfeinerung oder eine Tabellierung über dem Logarithmus der Spezies können dieses Problem zwar lösen, doch ist damit meist ein deutlicher Mehraufwand bei dem Zugriff auf die Daten einer Tabelle verbunden. Deshalb sollte bei der Wahl der Fortschrittsvariablen darauf geachtet werden, einen solchen Fall wenn möglich zu vermeiden.

Es hat sich gezeigt, daß bei der automatischen Reduktion von Alkan-Luft-Gemischen  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{O}_2$  geeignet sind, die Mannigfaltigkeit zu parametrisieren. In dieser Arbeit wurden sie in dieser Reihenfolge benutzt; bei Verwendung von nur einer Fortschrittsvariablen wurde  $\text{CO}_2$  gewählt, bei zwei Fortschrittsvariablen wurde zusätzlich noch  $\text{H}_2\text{O}$  verwendet, und bei Rechnungen mit drei Fortschrittsvariablen wurde als dritter Parameter  $\text{O}_2$  gewählt.

Bei zunehmender Anzahl von Fortschrittsvariablen wird es immer schwieriger, Speziesmassenbrüche zu finden, die geeignet sind, die Mannigfaltigkeit zu parametrisieren. Dann erscheint es als sinnvoll, nicht mehr Speziesmassenbrüche als Fortschrittsvariablen zu verwenden, sondern abstrakte Parameter, die entsprechend der Mannigfaltigkeit zu wählen sind [13].

In der vorliegenden Arbeit wurden aber nur maximal drei Fortschrittsvariablen verwendet, darum soll nicht weiter auf dieses Problem eingegangen werden.

### 3.7 Parametersätze, für die keine ILDM existiert

Bei der Verwendung eines detaillierten Mechanismus zur Beschreibung der chemischen Prozesse können für alle Speziesmassenbrüche und Temperaturen, die das Ungleichungssystem 3.4 erfüllen, die Reaktionsgeschwindigkeit und andere physikalische Größen bestimmt

werden. Werden dagegen Temperatur/Enthalpie und Speziesmassenbrüche zur Parametrisierung der ILDM verwendet, so können in der Regel nicht mehr für alle in 3.4 definierten Zustände Punkte auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit gefunden werden. So werden zum Beispiel für sehr tiefe Temperaturen bzw.  $\text{CO}_2$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenbrüche von fast Null keine entsprechenden Punkte auf der Mannigfaltigkeit gefunden. Dies ist leicht verständlich, da für solche unverbrannten Zustände die Annahme, daß alle schnellen Prozesse bereits relaxiert sind, nicht mehr gültig ist.

Besonders bei Verwendung von mehr als zwei Reaktionsfortschrittsvariablen kommt es vor, daß nicht mehr für alle der stöchiometrisch erlaubten Kombinationen von Fortschrittsvariablen Punkte auf der ILDM gefunden werden können. So konnten bei vorgegebenen  $\text{CO}_2$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenbrüchen nicht mehr für alle stöchiometrisch erlaubten  $\text{O}_2$ -Massenbrüche ILDM-Punkte gefunden werden.

Trotzdem können bei der Simulation von Verbrennungsvorgängen Werte für solche Bereiche benötigt werden. So gibt es in den meisten Verbrennungssystemen unverbrannte Bereiche, bei denen die Beschreibung mit der ILDM-Methode nicht möglich ist. Außerdem kann es je nach Wahl der Startwerte und der verwendeten Numerik vorkommen, daß Kombinationen von Fortschrittsvariablen während der Simulation benötigt werden, für die keine ILDM gefunden werden konnte.

In diesen Fällen kann die ILDM-Methode nicht die gewünschten chemischen Daten liefern und es müssen andere Modelle zur Beschreibung der Chemie verwendet werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Modelle werden in Kapitel 6 detailliert beschrieben.

### 3.8 Zustände, die nicht auf der Mannigfaltigkeit liegen

Bei der Simulation von Verbrennungssystemen treten häufig Zustände auf, die nicht auf der Mannigfaltigkeit liegen. So sind Randbedingungen und Anfangszustände im Allgemeinen keine Zustände auf der Mannigfaltigkeit. Vorausgesetzt  $\lambda_{m+1} < 0$ , so erfolgt eine Relaxation aufgrund der schnellen chemischen Zeitskalen auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit. Ist  $\lambda_{m+1} > 0$ , so würde der Zustand von der Mannigfaltigkeit wegbewegt und die ILDM-Annahme wäre physikalisch sinnlos. In einem linearen System entspräche der Eigenwert  $\lambda_{m+1}$  der Zeitskala, mit der die Relaxation erfolgt. Reale chemische Systeme sind dagegen stark nicht-linear. Darum ist die Linearisierung nur lokal erlaubt. Die Eigenwerte und die Eigenvektoren sind stark abhängig vom Ort im Zustandsraum. Deshalb können die Eigenwerte und die Eigenvektoren eines Zustandes auf der ILDM nur sehr begrenzt Aufschluß darüber geben, mit welcher Geschwindigkeit ein Zustand auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert. Bei der Behandlung eines solchen Zustands ist zu unterscheiden, ob der Zustand in der Nähe der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit liegt oder nicht. Ist dies der Fall, kann für Zustände in der Nähe der ILDM angenommen werden, daß die Relaxation sehr schnell

erfolgt. Man projiziert den Zustand auf die Mannigfaltigkeit und beschreibt die gesamte Dynamik des chemischen Systems mit Hilfe der ILDM. Je größer die Entfernung des Zustands von der ILDM ist und je langsamer die Relaxation erfolgt, desto größer ist der Fehler, den man macht, wenn man Relaxationsvorgänge durch eine einfache Projektion beschreibt.

Liegt der Zustand, dagegen in einem Bereich, in dem keine ILDM existiert, zum Beispiel im unverbrannten Bereich, so ist eine solche Projektion überhaupt nicht möglich. Es müssen andere Modelle verwendet werden, um das chemische System zu beschreiben.

### 3.9 Wechselwirkung mit physikalischen Prozessen

In den bisherigen Betrachtungen wurden nur räumlich homogene Systeme untersucht, in denen die gesamte Dynamik des chemischen Systems durch den chemischen Quellterm beschrieben werden kann (Gleichung 3.3). Die meisten Verbrennungssysteme sind aber räumlich inhomogen. In ihnen spielen physikalische Transportprozesse eine wichtige Rolle. In diesem Fall sind die Navier-Stokes-Gleichungen 10.1-10.4 zu lösen. Da in der ILDM-Methode nur räumlich homogene Systeme betrachtet werden, stellt sich die Frage, in wie weit eine Beschreibung der Chemie in räumlich inhomogenen Systemen mit Hilfe von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten möglich ist. Die Dynamik eines räumlich inhomogenen Systems läßt sich als

$$\frac{\partial \vec{x}(\vec{r}, t)}{\partial t} = \vec{S}(\vec{x}(\vec{r}, t)) + \vec{T}(\vec{x}(\vec{r}, t), \nabla \vec{x}(\vec{r}, t), \Delta \vec{x}(\vec{r}, t)) \quad 3.36$$

zu schreiben.  $\nabla$  ist dabei der Nabla-Operator und  $\Delta$  der Laplace-Operator. Im Gegensatz zum chemischen Quellterm  $\vec{S}(\vec{x})$ , der nur vom Zustandsvektor abhängt, sind also die physikalischen Prozesse  $\vec{T}$  auch von Ortsableitungen des Zustandsvektors abhängig.

Bei Verwendung der ILDM-Methode zur Beschreibung eines chemischen Systems wird davon ausgegangen, daß die gesamte Dynamik des Systems sich auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit abspielt. Diese kann durch einen Satz von  $m$  Variablen  $\vec{\Theta}$  beschrieben werden

$$\frac{\partial \vec{x}(\vec{\Theta})}{\partial t} = \vec{S}(\vec{\Theta}). \quad 3.37$$

In einem inhomogenen Verbrennungssystem müssen aber noch physikalische Prozesse wie die Diffusion und die Konvektion berücksichtigt werden. Ein konvektiver Prozeß wird durch

$$\frac{\partial \bar{x}}{\partial t} = -\bar{v} \cdot \text{grad } \bar{x}(\bar{\theta}) \quad 3.38$$

dargestellt. Dies kann zu

$$\frac{\partial \bar{x}}{\partial t} = -\bar{v} \sum_{i=1}^m \frac{\partial \bar{x}}{\partial \theta_i} \text{grad } \theta_i \quad 3.39$$

umgeformt werden [8]. Der Term  $\partial \bar{x} / \partial \theta_i$  ist eine Änderung parallel zur Mannigfaltigkeit. Deshalb bewirkt die Konvektion nur eine Bewegung entlang der ILDM, ein relaxiertes System wird also nie durch Konvektion von der Mannigfaltigkeit wegbewegt. Die Konvektion schränkt die Verwendung der ILDM-Methode also nicht ein.

Betrachtet man dagegen einen Diffusionsprozeß in einem eindimensionalen Raum mit der Ortskoordinate  $r$

$$\frac{\partial \bar{x}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \bar{x}}{\partial r^2}, \quad 3.40$$

so erhält man bei einer eindimensionalen Mannigfaltigkeit unter Verwendung der Kettenregel [9]

$$\frac{\partial \bar{x}}{\partial t} = D \left( \frac{\partial \bar{x}}{\partial \theta} \frac{\partial^2 \theta}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \bar{x}}{\partial \theta^2} \frac{\partial \theta}{\partial r} \frac{\partial \theta}{\partial r} \right). \quad 3.41$$

Der Term  $\frac{\partial \bar{x}}{\partial \theta} \frac{\partial^2 \theta}{\partial r^2}$  beschreibt wegen  $\frac{\partial \bar{x}}{\partial \theta}$  immer eine Bewegung tangential zur Mannigfaltigkeit. Der zweite Term  $\frac{\partial^2 \bar{x}}{\partial \theta^2} \frac{\partial \theta}{\partial r} \frac{\partial \theta}{\partial r}$  enthält in der Regel sowohl einen Anteil tangential wie auch einen normal zur niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit. Diffusive Prozesse können also theoretisch einen auf die ILDM relaxierten Zustand von dieser wegbewegen. Trotzdem funktioniert die Beschreibung des chemischen Systems mit Hilfe von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten, sofern die Zeitskalen der schnellen Relaxationsprozesse deutlich schneller sind als die Zeitskalen der physikalischen Transportprozesse. Existieren Diffusionsprozesse, die einen Zustand von der Mannigfaltigkeit wegbewegen, so sorgen die schnellen chemischen Relaxationsprozesse dafür, daß der Zustand die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit nicht verläßt bzw. die Abweichung zu vernachlässigen ist. Laufen dagegen die physikalischen Transportprozesse mit ähnlichen Zeitskalen oder sogar schneller ab als chemischen Relaxationsprozesse, so kann ein bereits relaxierter Zustand von der Mannigfaltigkeit wegbewegt werden, oder es findet erst gar keine Relaxation auf die ILDM statt. Um die Gültigkeit der

ILDLM-Annahme sicherzustellen, müssen also die Zeitskalen der physikalischen Transportprozesse deutlich langsamer sein als der langsamste der chemischen Relaxationsprozesse.

Dies kann durch eine genügend große Anzahl an Fortschrittsvariablen sichergestellt werden (siehe Abschnitt 3.5). Der Einfluß der physikalischen Transportprozesse auf die Spezieszusammensetzung wird in Kapitel 10 anhand von laminaren Flammen detailliert untersucht. Für das untersuchte Dekan-Luft-Gemisch hat sich gezeigt, daß bei Verwendung von zwei Fortschrittsvariablen die Radikalprofile z.B. O deutliche Abweichungen von den Profilen zeigen, die man bei der Simulation unter Verwendung von detaillierter Chemie erhält. Bei der Verwendung von drei Reaktionsfortschrittsvariablen erhält man dagegen eine deutlich bessere Übereinstimmung (Abbildung 10.1)

Dieses Ergebnis kann aber nur bedingt verallgemeinert werden. Die benötigte Dimension der ILDM ist immer vom verwendeten Brennstoff und vom betrachteten Verbrennungssystem abhängig. So wird in Systemen, bei denen die Diffusion eine geringere Rolle spielt, auch eine Beschreibung mit Hilfe von weniger Fortschrittsvariablen möglich sein.

Unter der Voraussetzung, daß die chemischen Relaxationsprozesse deutlich schneller sind als die physikalischen Transportprozesse, kann auch in räumlich inhomogenen Systemen das chemische System durch die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit beschrieben werden. Mathematisch entspricht dies einer Projektion  $\Pi$  der Transportprozesse auf den Raum, der von den lokalen Eigenvektoren der langsamen Zeitskalen aufgespannt wird:

$$\begin{aligned} \bar{x} &= \bar{x}(\bar{\theta}) \text{ mit} \\ \Pi \bar{x} &= \bar{\theta} \text{ und } \Pi \partial \bar{x} = \partial \bar{\theta}. \end{aligned} \quad 3.42$$

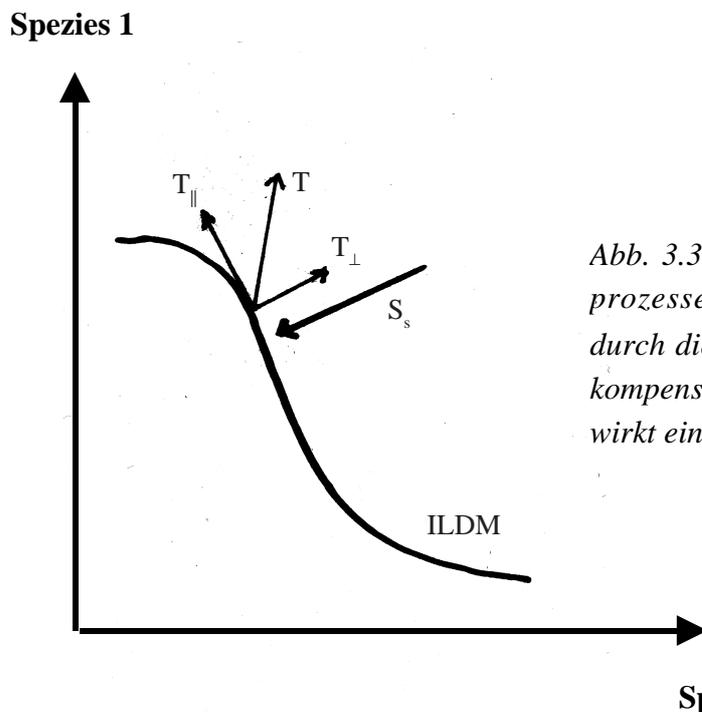


Abb. 3.3 Der Anteil der physikalischen Transportprozesse  $T_{\perp}$  senkrecht zur Mannigfaltigkeit wird durch die schnellen chemischen Relaxationsterme  $S_s$  kompensiert. Nur der Anteil  $T_{\parallel}$  ist wirksam und bewirkt eine Bewegung entlang der ILDM.

Dabei ist  $\Pi$  die Parametrisierungsmatrix der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit. Der Zustandsvektor des chemischen Systems  $\bar{x}$  ist in diesem Fall eine eindeutige Funktion der Parameter, die die ILDM parametrisieren.

Betrachtet man den Term der physikalischen Transportprozesse im Raum der Eigenvektoren, so erhält man

$$\begin{aligned}\tilde{\vec{T}} &= \mathbf{U}^{-1}\vec{T} \\ &= \left( \tilde{\vec{T}}_{\parallel}, \tilde{\vec{T}}_{\perp} \right).\end{aligned}\tag{3.43}$$

Mit der Annahme, daß die schnellen chemischen Relaxationsprozesse den Anteil senkrecht zur ILDM kompensieren, ergibt sich:

$$\begin{aligned}\tilde{\vec{T}} &= \left( \tilde{\vec{T}}_{\parallel}, 0 \right) \\ &= \begin{pmatrix} \mathbf{E} & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{U}^{-1}\vec{T}.\end{aligned}\tag{3.44}$$

$\mathbf{E}$  ist die  $m \times m$  Einheitsmatrix. Durch Multiplikation mit der Transformationsmatrix  $\mathbf{U}$  erhält man den Transportterm im ursprünglichen Koordinatensystem,

$$\begin{aligned}\vec{T}_{\parallel} &= \mathbf{U} \tilde{\vec{T}} \\ &= \mathbf{U} \begin{pmatrix} \mathbf{E} & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{U}^{-1}\vec{T} \\ &= \mathbf{U}_{\parallel} \mathbf{U}_{\parallel}^{-1}\vec{T}.\end{aligned}\tag{3.45}$$

Die Matrix  $\mathbf{P} = \mathbf{U}_{\parallel} \mathbf{U}_{\parallel}^{-1}$  wird üblicherweise als Projektionsmatrix bezeichnet. Für die zeitliche Änderung der Fortschrittsvariablen aufgrund chemischer und physikalischer Prozesse ergibt sich hiermit

$$\frac{\partial \vec{\theta}}{\partial t} = \vec{S}(\vec{\theta}) + \mathbf{P} \vec{T}(\vec{\theta}).\tag{3.46}$$

# Kapitel 4

## Numerische Berechnung der ILDM

### 4.1 Einleitung

Ein Punkt auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit ist durch die Gleichungen

$$U_s^{-1} \vec{S}(\vec{x}) = 0 \quad \text{und} \quad P\vec{x} = \vec{\theta} \quad 4.1$$

eindeutig bestimmt. Die Lösung dieser algebraischen Gleichungen ist schwierig, da die chemischen Reaktionsmechanismen in aller Regel stark nicht-linear sind.

Ein weiteres Problem bei der Lösung dieses Gleichungssystems ist die große Steifheit der Reaktionsmechanismen. Bei Alkan-Luft-Gemischen nimmt die Steifheit noch mit zunehmender Anzahl von C-Atomen zu und ist bei Dekan deutlich größer als bei Methan.

Bei stark nicht-linearen algebraischen Systemen ist es oft sinnvoll, die Gleichungen so umzuformen, daß man die stationäre Lösung eines zeitabhängigen gewöhnlichen Differentialgleichungssystems bestimmt beziehungsweise ein gemischtes System aus Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen löst.

Der in dieser Arbeit verwendete Lösungsalgorithmus zur Bestimmung der ILDM beruht im wesentlichen auf eine von H. Niemann in seiner Dissertation entwickelten Algorithmus. Dieser soll daher an dieser Stelle kurz beschrieben werden. Eine ausführliche Beschreibung ist in [14] zu finden. Es hat sich allerdings gezeigt, daß vor allem bei höheren Drücken die Konvergenz dieses Verfahrens einige Probleme bereitet. Die nötigen Änderungen und Ergänzungen sind in Abschnitt 4.3 beschrieben.

### 4.2 Umformulierung des Gleichungssystems

Sei  $\vec{c}(\vec{\theta})$  die Parametrisierung der ILDM in der Basis der Eigenvektoren, so kann 4.1 in

$$\begin{aligned} U_s^{-1} \vec{S} + 0 &= 0 \\ U_s^{-1} \vec{S} + U_s^{-1} U_L \vec{c} &= 0 \\ \vec{S} + U_L \vec{c} &= 0 \end{aligned} \quad 4.2$$

umgeformt werden. Das Gleichungssystem 4.2 wird dann in eine Differentialgleichung umgewandelt

$$\frac{\partial \bar{x}}{\partial t} = \bar{S}(\bar{x}) + \mathbf{U}_L(\bar{x})\bar{c} . \quad 4.3$$

Gleichung 4.1 bedeutet physikalisch, daß der schnelle Anteil der chemischen Reaktionen relaxiert ist und daß dabei die Parameter  $\bar{\theta}$  gelten. Die physikalische Interpretation von 4.3 lautet, daß dem schnellen Anteil des chemischen Systems die Relaxation erlaubt wird, während der langsame Anteil durch die Parameter  $\bar{\theta}$  vorgegeben und festgehalten ist.

Die Parametrisierung in der Basis der Eigenvektoren bereitet allerdings Probleme, da eine analytische Berechnung der Parameter  $\bar{c}(\bar{\theta})$  in Abhängigkeit der Parameter in der Basis des physikalischen Zustandsraumes nicht möglich ist, weil die Eigenräume stark ortsabhängig sind und nicht analytisch zu berechnen sind [14].

Daher wird parallel zu 4.3 ein System von Integralgleichungen gelöst, das die Parameter  $\bar{c}(t)$  bestimmt.

$$\bar{c}(t) = \int_0^t g(\bar{x}, \bar{c}, \bar{\theta}) \quad 4.4$$

Dabei soll  $\bar{c}(t)$  so verändert werden, daß die Parameter  $\bar{\theta}$  angenommen werden also  $\mathbf{P}\bar{x} = \bar{\theta}$  erfüllt ist. Dies entspricht einem klassischen Problem der Regeltechnik [14,29,30]. Ein Standardverfahren zur Lösung ist der PI-Algorithmus, der hier in seiner mehr-dimensionalen Form verwendet wurde (Gleichung 4.6).

Der chemische Quellterm besitzt einen Erhaltungsraum  $\mathbf{U}_c$ , der immer ein Unterraum von  $\mathbf{U}_s$  ist. Es ist sinnvoll, zur Regelung des Erhaltungsraums  $\mathbf{U}_c$  nicht die zugehörigen Eigenvektoren zu verwenden, sondern Kontrollvektoren  $\mathbf{B}_c$ . Anderenfalls werden bei der Einstellung dieser Parameter auch Spezies, die in sehr kleinen Mengen vorkommen, wie z.B. Radikale höherer Kohlenwasserstoffe, verändert, was zu numerischen Schwierigkeiten führt.

Insgesamt ergeben sich damit die zu lösenden Gleichungen

$$\dot{\bar{x}} = \bar{S}(\bar{x}) + \mathbf{B}_c \bar{c}_c(t) + \mathbf{U}_1(\bar{x}) \quad 4.5$$

$$\bar{c}(t) = \kappa \left( \bar{\gamma}(t) + \frac{1}{\tau} \bar{\Gamma}(t) \right) \quad \text{mit} \quad 4.6$$

$$\bar{\gamma}(t) = \begin{pmatrix} \bar{\gamma}_c \\ \bar{\gamma}_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{P}_c \mathbf{B}_c & \\ & \mathbf{P} \mathbf{U}_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{P}_c \bar{x}(t) - \bar{\theta}_c \\ \mathbf{P}_1 \bar{x}(t) - \bar{\theta}_1 \end{pmatrix} \quad 4.7$$

$$\bar{\Gamma}(t) = \int_0^t \bar{\gamma}(t) dt \quad 4.8$$

Die Regelparameter  $\kappa$  und  $\tau$  werden dabei nach den Einstellregeln für einen PI-Algorithmus nach Ziegler/Nicols [14],[30] gewählt.

## 4.3 Numerische Lösung des Gleichungssystems

### 4.3.1 Schneller Algorithmus unter Verwendung einer Fixpunktiteration

Die Berechnung der Eigenwerte  $\lambda_i$  und der Eigenvektorbasis  $\mathbf{U}$  ist sehr rechenzeitintensiv. Als erstes muß die Jakobimatrix  $\mathbf{J}(\bar{x}_i)$  bestimmt werden, und dann müssen ihre Eigenwerte und die zugehörigen Eigenvektoren berechnet werden. Um den Rechenaufwand zu verringern, wurde der Lösungsprozeß in eine innere Schleife, bei der die Gleichungen 4.3 und 4.4 gelöst werden, und eine äußere Fixpunktiteration zerlegt [14]. Die Berechnung des Eigenraums in der Fixpunktiteration ist möglich, da die Mannigfaltigkeiten meist nur mäßig nichtlinear sind und der Eigenraum  $\mathbf{U}_L$  der langsamen Zeitskalen sehr viel weniger steif ist als das gesamte Reaktionssystem. In der Relaxation wird nicht der stark anisotrope Zustandsraum verwendet, sondern der Zustandsvektor  $\bar{x}$  wird auf einen hoch-dimensionalen Einheitswürfel skaliert. Dies ist nötig, um auch sehr kleine Größen noch hinreichend genau numerisch berechnen zu können. Diese Skalierung wird in der äußeren Fixpunktiteration durchgeführt.

Die Gleichungen 4.5 und 4.6 innerhalb der Fixpunktiteration werden mit Hilfe des Standard-differential-algebraischen Gleichungssystemlösers LIMEX [16,17] berechnet.

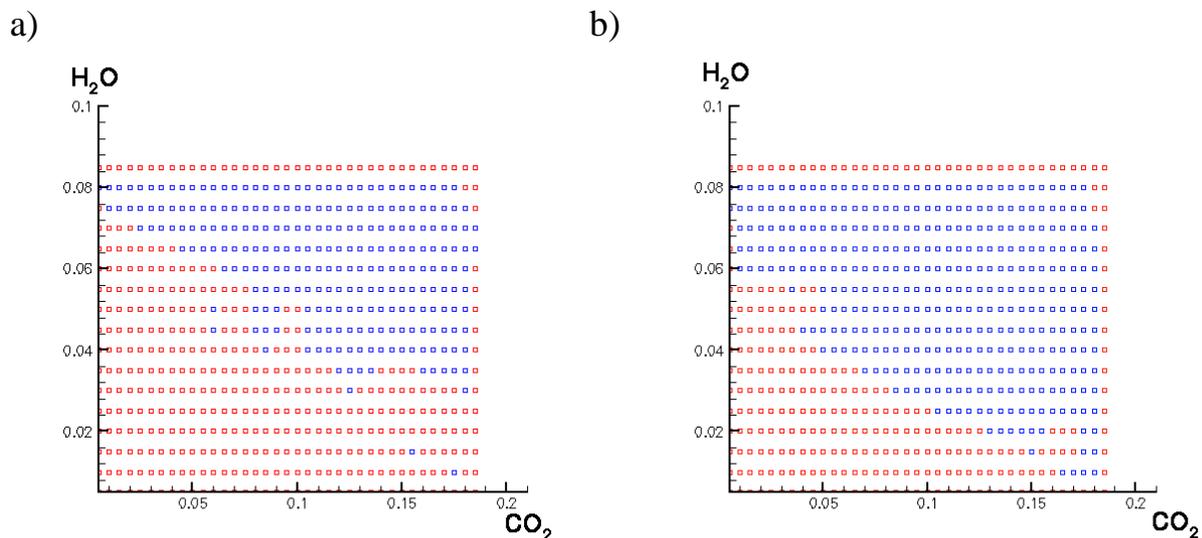


Abbildung 4.1 ILDM-Tabelle für ein Dekan-Luft-Gemisch bei einer stöchiometrische Mischung und einer konstanten Enthalpie bei einem Druck von 50 bar. Im blauen Bereich konnte eine ILDM mit den entsprechenden Parametern gefunden werden, im roten Bereich nicht. a) Verwendung des schnellen Algorithmus 4.3.1. b) Verwendung des neuen Algorithmus 4.3.2 wenn der schnelle Algorithmus 4.3.1 a nicht konvergiert.

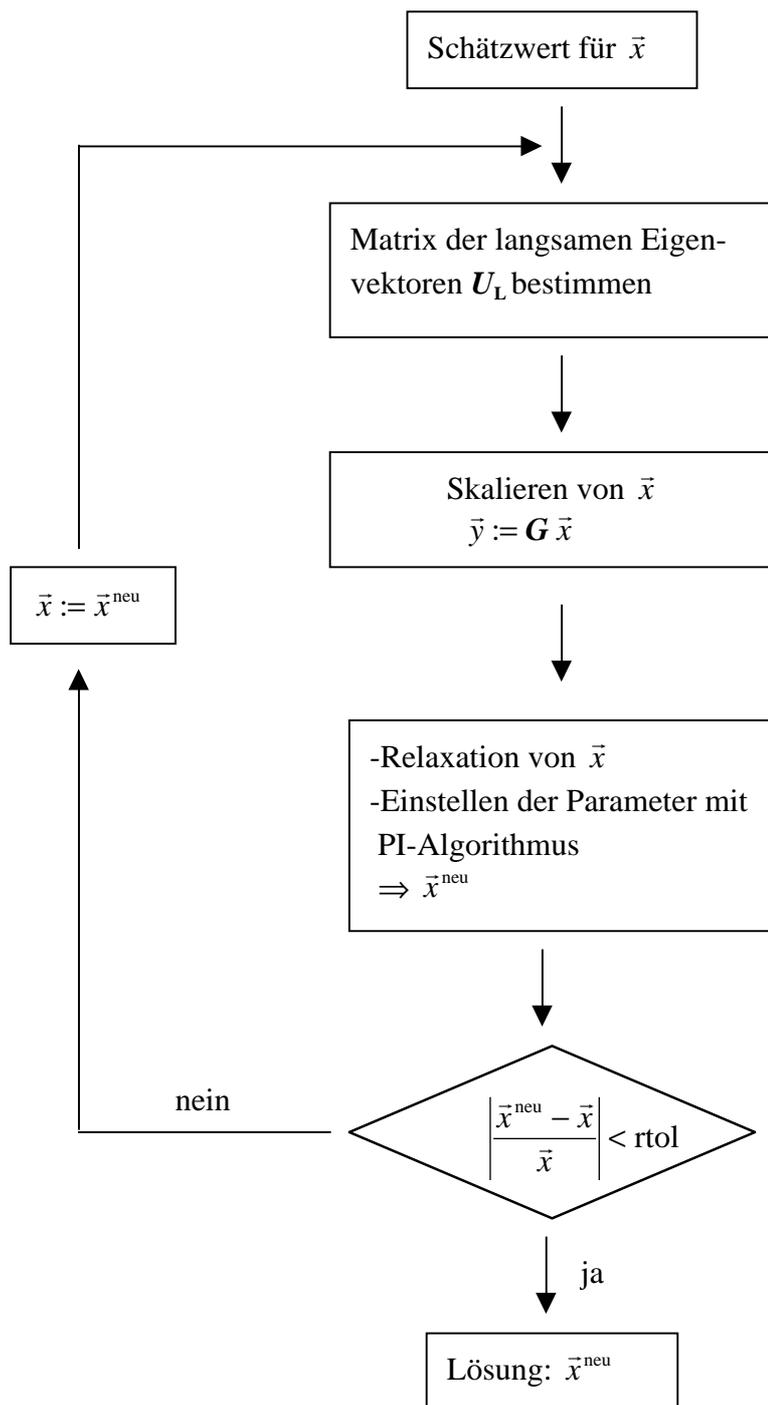


Abbildung 4.2 Schneller Algorithmus zur Berechnung eines Punktes  $\vec{x}$  auf der niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeit. Die Neuberechnung der Basis der langsamen Eigenvektoren erfolgt nur in der äußeren Fixpunktiteration, die Relaxation mit vorgegebenen Parametern wird bei konstant gehaltenen Eigenwerten durchgeführt. Es wurden nur die für das Verständnis wichtigsten Schritte aufgeführt.

### 4.3.2 Algorithmus für sehr steife und nicht-lineare chemische Systeme

Der in 4.3.1 beschriebene Algorithmus ist in der Lage, die Gleichungen zur Bestimmung der ILDM zu lösen. Besonders bei hohen Drücken tritt bei diesem Algorithmus das Problem auf, daß die Fixpunktiteration in der äußeren Schleife nicht konvergiert. Bei der Berechnung des Eigenraums der langsamen Zeitskalen in der äußeren Fixpunktiteration wurde ausgenutzt, daß dieser meist wesentlich weniger nicht-linear ist als das gesamte chemische System. Bei hohen Drücken ist die verbleibende Nicht-Linearität immer noch so stark, daß die Konvergenz in vielen Fällen nicht mehr gewährleistet ist.

Der Algorithmus wurde daher so modifiziert, daß die Berechnung des Eigenraumes  $U_L$  nach jedem Limex-Zeitschritt neu durchgeführt wird. Mit dieser Änderung ist man in der Lage, die Konvergenz deutlich zu verbessern. Der Nachteil ist, daß dieses Verfahren wesentlich rechenaufwendiger ist, weil die Berechnung der Jakobimatrix in dem zugehörigen Eigenraum einen Großteil der benötigten Rechenzeit in Anspruch nimmt.

Eine Möglichkeit, den zusätzlichen Aufwand in Grenzen zu halten, ist, diesen Algorithmus nur zu verwenden, wenn der schnelle Algorithmus nicht in der Lage war, die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit zu bestimmen.

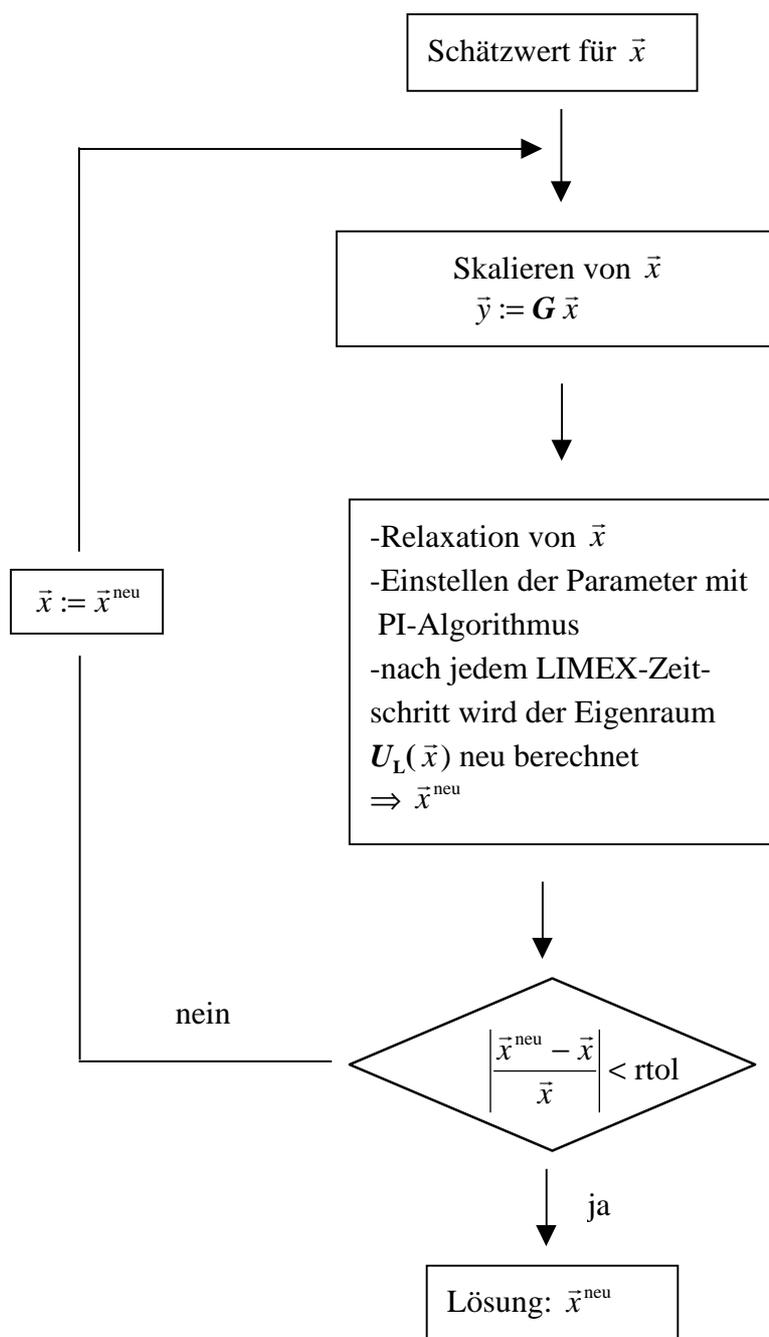


Abbildung 4.3 Algorithmus zur Berechnung eines Punktes  $\bar{x}$  auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit. Die Neuberechnung der Basis der langsamen Eigenvektoren erfolgt nach jedem LIMEX-Zeitschritt neu. In der äußeren Iteration wird lediglich die Skalierung des Zustandsvektors neu angepaßt. Es wurden nur die für das Verständnis wichtigsten Schritte aufgeführt.

## 4.4 Bestimmung eines geeigneten Schätzwertes für die Berechnung eines ILDM-Punktes

Die bisherigen Betrachtungen sind immer davon ausgegangen, daß ein geeigneter Schätzwert für die numerische Berechnung existiert. Das beschriebene numerische Verfahren ist aber darauf angewiesen, daß der Startwert in der Nähe des gesuchten Punktes auf der Mannigfaltigkeit liegt. Besonders bei der Erstellung von ILDM-Tabellen für höhere Kohlenwasserstoff-Luft-Gemische und bei hohen Drücken treten sonst Probleme auf. Besonders bei Verwendung des schnellen Algorithmus konvergiert die äußere Fixpunktiteration nicht, oder aber die Relaxation auf die ILDM mit vorgegebenen Parametern scheitert.

Daher ist es für den Erfolg der numerischen Bestimmung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit von zentraler Bedeutung, daß immer ein geeigneter Startwert verwendet wird. Im folgenden Abschnitt wird deshalb ausführlich auf diese Problematik eingegangen.

### 4.4.1 Grundlegende Überlegungen zur Wahl des Schätzwertes

Prinzipiell kann man davon ausgehen, daß ein Schätzwert umso besser geeignet ist, je näher er an dem gesuchten Punkt auf der Mannigfaltigkeit liegt. Es hat sich gezeigt, daß das numerische Verfahren nur dann stabil eine Lösung findet, wenn dieser Schätzwert auch auf der ILDM liegt oder aber zumindest näherungsweise die ILDM-Annahme erfüllt. Deshalb wurden nur schon berechnete ILDM-Punkte als Schätzwerte verwendet. Die Parameter dieser Startwerte für die Numerik sollten zudem möglichst wenig von denen des gesuchten Punktes abweichen.

Die Grundlage für die Erstellung einer ILDM-Tabelle ist ein Gitter mit vorgegebener Schrittweite für jede Tabellenkoordinate. Um den Rechenaufwand für die Tabellengenerierung möglichst klein zu halten, sollten zudem möglichst nur ILDM-Punkte, die auf diesem Gitter liegen, verwendet werden.

### 4.4.2 Adaptive Verfeinerung des Tabellengitters

Aus diesen Überlegungen ergibt sich, daß als Startwert für die Numerik standardmäßig ein ILDM-Punkt verwendet wird, für den bis auf einen Koordinate alle Parameter gleich sind. Diese Koordinate soll auch nur um die Schrittweite des Gitters von dem gewünschten Parameter abweichen. Solche Punkte werden im Folgenden als Nachbarpunkte des gesuchten ILDM-Punktes bezeichnet.

In den meisten Fällen sind die oben beschriebenen Algorithmen in der Lage, mit einem solchen Schätzwert die ILDM-Gleichungen erfolgreich zu lösen, sofern zu den vorgegebenen Parametern überhaupt ein Punkt auf der ILDM existiert.

Bei der Erstellung von ILDM-Tabellen mit vier oder mehr Koordinaten limitiert die Tabellengröße die Wahl der Schrittweite der Tabellenkoordinaten. Wenn aber ein zu grobes Gitter verwendet wird, sind die Nachbarpunkte in einigen Fällen so weit von dem gesuchten ILDM-Punkt entfernt, daß die numerische Berechnung fehlschlägt. Dieses Problem tritt aber nur in einigen Tabellierungsbereichen auf, besonders da, wo die Lücke zwischen den langsamen und den schnellen Eigenwerten klein ist und die Relaxation auf die ILDM bei vorgegeben Parametern Schwierigkeiten bereitet (Abbildung 4.6). In den meisten Regionen der Tabelle ist aber auch ein grobes Gitter in der Lage, genügend gute Startwerte für die Numerik zu liefern.

Deshalb ist es sinnvoll, in den problematischen Bereichen die Schrittweite adaptiv zu verfeinern und in den übrigen Regionen das grobe Gitter zu verwenden. Diese Verfeinerung wurde so implementiert, daß der Faktor, um den die Gitterschrittweite verringert werden soll, frei gewählt werden kann. Zudem ist es auch möglich, falls nötig, weitere Verfeinerungen um diesen Faktor vorzunehmen. Die Wahl des Verfeinerungsfaktors und der Verfeinerungsstufen ist stark vom Verbrennungssystem und vom verwendeten Gitter abhängig und soll daher nicht weiter diskutiert werden.

Bei der Relaxation unter Vorgabe der Parameter kommt es gelegentlich dazu, daß je nach Schätzwert ein oder mehrere Speziesmassenbrüche kleiner Null werden. In diesem Fall ist es nicht mehr möglich, sinnvolle Reaktionsgeschwindigkeiten für den Zustandsvektor anzugeben. Da dieses Phänomen auf das Einstellen der Parameter bei der Relaxation zurückzuführen ist, ist es stark von der Richtung abhängig, in der die Annäherung an den gesuchten ILDM-Punkt erfolgt. Oft kann in einem solchen Fall auch eine Verfeinerung der Koordinatenschrittweite keine Abhilfe schaffen, und es ist sinnvoll, einen anderen Nachbarpunkt als Schätzwert für die numerische Berechnung zu verwenden.

#### 4.4.3 Suche eines Schätzwertes bei In-Situ-Tabellengenerierung

Bei den bisherigen Überlegungen wurde immer davon ausgegangen, daß bereits eine Nachbarzelle erfolgreich berechnet wurde. Bei der Erzeugung einer ILDM-Tabelle vor deren Verwendung in einem CFD-Programm kann dies leicht sichergestellt werden, indem die Tabelle entsprechend der Reihenfolge generiert wird. Bei der In-Situ-Generierung wird die ILDM-Tabelle aber erst beim Ablauf der Verbrennungssimulation erzeugt, und das Simulationsprogramm bestimmt, welche ILDM-Punkte zu berechnen sind. In diesem Fall wird im Allgemeinen keine Nachbarzelle bereits berechnet worden sein. Um einen geeigneten Startwert zu erhalten, wird nach dem nächsten vorhandenen ILDM-Punkt in der Tabelle gesucht,

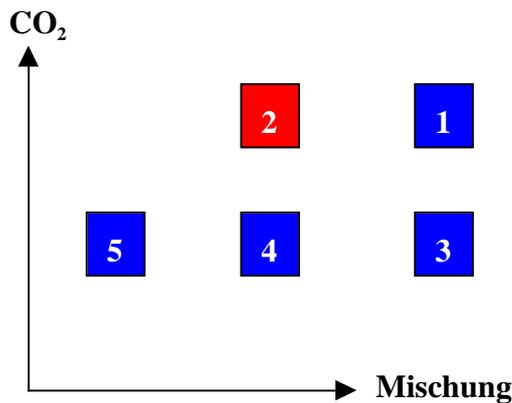


Abbildung 4.4 Beispiel für die Iteration zu den gewünschten Koordinaten entlang der Geraden bei einer eindimensionalen ILDM mit variabler Mischung. Eingezeichnet sind die dabei berechneten ILDM-Punkte. Bei blauen Rechtecken war die Berechnung erfolgreich, bei roten nicht. Am Anfang befindet sich lediglich der Punkt 1 in der Tabelle; er entspricht ungefähr dem Gleichgewichtswert bei stöchiometrischer Mischung. Gesucht ist der Gleichgewichtswert bei magerer Mischung (Punkt 5). Folgt man einer Geraden, so wird Punkt 2 bei der Iteration berechnet. Er liegt aber oberhalb des Gleichgewichts und es kann keine ILDM bestimmt werden. Daher setzt der Algorithmus die Annäherung mit den Punkten 3 und 4 fort, bis der Zielpunkt 5 erreicht wird. Die adaptive Verfeinerung der Schrittweite (4.4.2) wurde hier nicht verwendet.

und es werden die Punkte auf dem Tabellengitter berechnet, die auf einer Geraden zwischen dem schon gefundenen ILDM-Punkt und dem gesuchten Punkt liegen.

Dabei kann es aber vorkommen, daß diese Annäherung an den gesuchten Punkt nicht erfolgreich ist. Ist der Startwert für diese Iteration z. B. der Gleichgewichtswert bei einer stöchiometrischen Mischung und ist der Gleichgewichtswert bei einer mageren Mischung gesucht, so können je nach Tabellengitter ein Teil der Punkte auf der Geraden oberhalb des Gleichgewichts liegen bzw. sogar Parametern entsprechen, die aufgrund der vorhandenen Mischung gar nicht realisiert werden können. In einem solchen Fall soll bei der Annäherung die Gerade verlassen werden und die Annäherung in einer anderen Koordinatenrichtung versucht werden (siehe Abb. 4.4). Diese automatische Suche nach einem Weg zu dem gesuchten ILDM-Punkt ist sehr wichtig für eine erfolgreiche In-Situ-Tabellierung und vereinfacht die Generierung einer ILDM-Tabelle deutlich. Dadurch wird der Algorithmus deutlich stabiler und es kann nicht vorkommen, daß wegen einer unglücklichen Wahl des Iterationsweges ganze Tabellenbereiche nicht erfolgreich berechnet werden können, da kein geeigneter Schätzwert für die Lösung der ILDM-Gleichungen zur Verfügung gestellt werden konnte.

#### 4.4.4 Berechnung des ersten ILDM-Punkts in der Tabelle

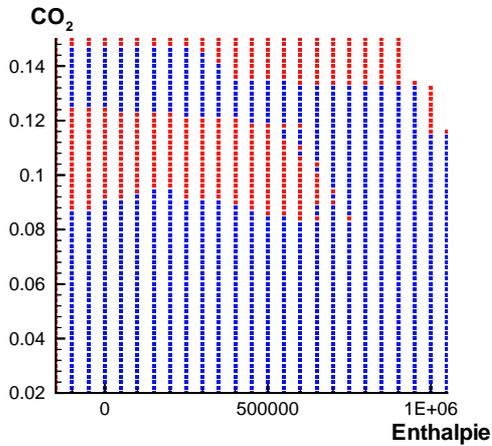
Bei der Berechnung des ersten ILDM-Punkts in der Tabelle kann kein Schätzwert aus der Tabelle verwendet werden; dieser muß daher bei der Initialisierung der ILDM-Routinen vorgegeben werden. Prinzipiell erfüllt der Gleichgewichtswert immer die ILDM-Gleichungen und ist daher auch Bestandteil der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit. Er wird aber normalerweise nicht auf dem Tabellengitter liegen. Daher werden die Koordinaten des Gleichgewichtswerts auf das Tabellengitter projiziert und die ILDM-Gleichungen für diese Parameter gelöst, wobei der Gleichgewichtswert als Startwert für die numerische Berechnung dient. In vielen Fällen kann so der erste Punkt auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit bestimmt werden.

Bei ILDMs mit drei Fortschrittsvariablen oder bei hohen Drücken ist es schwierig, Punkte, die sich bereits auf der ein- oder nulldimensionalen Mannigfaltigkeit befinden, mit zwei oder drei Reaktionsfortschrittsvariablen zu parametrisieren (siehe Kapitel 8). In diesem Fall ist es wenig sinnvoll für die Tabellenerzeugung, den Gleichgewichtswert als ersten Punkt in der Tabelle zu nutzen. Besser ist es, einen Punkt zu verwenden, der noch nicht auf die eindimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert ist. Es kann eine homogene Rechnung mit beliebigem Startpunkt durchgeführt werden und als Startwert für die Berechnung des ersten ILDM-Punktes dient ein Punkt auf dieser Trajektorie, der einer teilweise verbrannten Mischung entspricht.

### 4.5 Bestimmung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit durch ein Fortsetzungsverfahren

Das beschriebene numerische Verfahren ist in der Lage, auch für sehr steife und nicht-lineare chemische Systeme die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit zu bestimmen. Das verwendete numerische Verfahren ( Formel 4.3) kann anschaulich als Relaxation des chemischen Zustands auf die ILDM bei vorgegebenen Parametern (Formel 4.4) gedeutet werden. Ist der Eigenwert des langsamsten als relaxiert betrachteten Prozesses  $\lambda_{m+1}$  ungefähr gleich dem schnellsten der als langsam angenommen chemischen Prozesse  $\lambda_m$ , so ist der Erfolg dieser Relaxation auf die Mannigfaltigkeit nicht mehr sichergestellt. In diesem Fall wäre es physikalisch sinnvoller, die Dimension der Mannigfaltigkeit so zu wählen, daß  $\lambda_{m+1} \gg \lambda_m$ . Andererseits ist es bei der Simulation von komplexen Verbrennungssystemen meist nicht möglich, mehr als zwei bis drei Reaktionsfortschrittsvariablen zu verwenden. Bei vorgegebener Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit kann es also Bereiche geben, in denen die Lücke im Spektrum sehr klein wird oder verschwindet  $\lambda_{m+1} \approx \lambda_m$  (Abbildung 4.6). In diesem Fall versagt das oben beschriebene numerische Verfahren meistens (Abbildung 4.5.a).

a)



b)

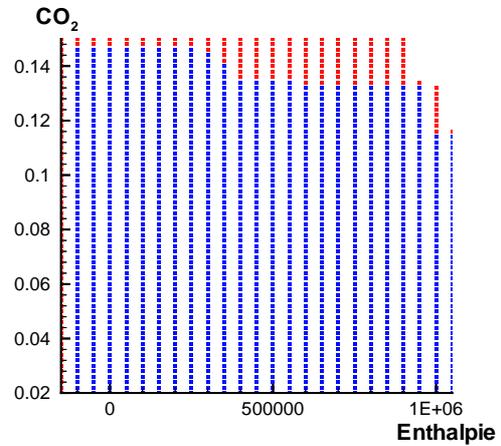


Abbildung 4.5 ILDM-Tabelle für Heptan bei einem Druck von 80 bar und einem Mischungsbruch von 0.078. Für den blauen Bereich konnte eine eindimensionale Mannigfaltigkeit gefunden werden, für den roten nicht. a) Lösung der ILDM-Gleichungen wie in 4.3 beschrieben. b) Nach Auffüllen der Tabelle mit homogenen Rechnungen.

Betrachtet man die eindimensionale ILDM-Tabelle für Heptan (in Abb. 4.5.a), und so sieht man, daß für Enthalpien bis ca. 650000 J/mol für  $\text{CO}_2$ -Massenbrüche zwischen 0.09 und 0.12 die Bestimmung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit fehlschlägt. Für höhere und niedrigere  $\text{CO}_2$ -Konzentrationen kann dagegen eine eindimensionale ILDM gefunden werden.

Ein möglicher Ausweg soll hier beschrieben werden. Die Grundidee ist, daß sobald ein chemischer Zustand auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert ist, eine Simulation mit dem reduzierten Mechanismus dasselbe Ergebnis liefert wie eine Rechnung mit detaillierter Chemie. Führt man eine homogene Rechnung mit detaillierter Chemie durch, bei der der Startwert ein Punkt auf der ILDM ist, so werden dann auch alle Zustände zu einem späteren Zeitpunkt auf der Mannigfaltigkeit liegen. Startet man in dem obigen Beispiel eine homogene Rechnung bei einem  $\text{CO}_2$ -Massenbruch von 0.09 und läßt man das Gemisch ins Gleichgewicht reagieren, so erhält man alle Punkte auf der eindimensionalen Mannigfaltigkeit, deren  $\text{CO}_2$ -Massenbruch größer ist. Auf diese Art können in einer Tabelle bestehende Löcher gefüllt werden. Der Vorteil dieser Methode ist, daß bei einer homogenen Rechnung nur das relativ einfache Gleichungssystem  $\vec{S}(\vec{x}) = \dot{\vec{x}}$  gelöst werden muß und nicht das komplizierte System aus Gleichung 4.1. Daher ist dieser Algorithmus sehr stabil und schlägt selbst bei sehr steifen und nicht-linearen Systemen nicht fehl. Zudem ist er unabhängig vom Eigenwertspektrum; selbst wenn  $\lambda_{m+1} \approx \lambda_m$  können mit dieser Methode physikalisch sinnvolle Werte

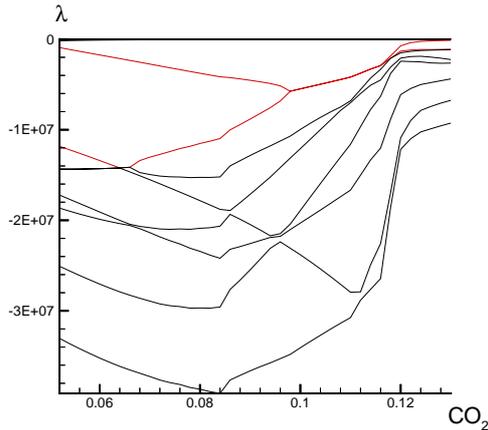


Abbildung 4.6 Eigenwertspektrum der eindimensionalen ILDM-Tabelle für Heptan für einen konstanten Mischungsbruch 0.0769 und eine konstante Enthalpie 500000 J/mol. Da eine einzige Reaktionsfortschrittsvariable verwendet wird, sollte  $\lambda_7 \gg \lambda_8$  sein (beide in rot gezeichnet). Für  $\text{CO}_2$ -Massenbrüche zwischen 0.09-0.12 ist aber  $\lambda_7 \approx \lambda_8$ . Wie in Abb. 4.1 a) zu sehen ist, schlägt die numerische Berechnung der ILDM in diesem Bereich fehl. Es ist deutlich zu sehen, daß auch bei einer höher-dimensionalen ILDM immer Bereiche auftreten, in denen die Lücke zwischen dem schnellsten der langsamen Eigenwerte und dem langsamsten der schnellen Zeitskalen die Lücke sehr klein wird.

gefunden werden. Bei Verwendung von einer Fortschrittsvariablen können so einfach bestehende Tabellen aufgefüllt werden, sofern die Berechnung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit für halb-verbrannte Zustände erfolgt ist.

Betrachtet man dagegen ILDMs mit zwei oder mehr Dimensionen, so tritt das Problem auf, daß Löcher in einer Tabelle mit diesem Algorithmus nicht mehr vollständig aufgefüllt werden können. Bei Verwendung einer Fortschrittsvariable werden die Werte der homogenen Rechnung immer in die Tabelle eingefügt, wenn die  $\text{CO}_2$ -Konzentration einem Punkt auf dem Tabellengitter entspricht. Bei Verwendung von mehr als einer Fortschrittsvariable wird aber in aller Regel nur der Massenbruch einer Fortschrittsvariable einem Wert auf dem Gitter exakt entsprechen, während die anderen etwas davon abweichen. Zudem werden bei dieser Methode nicht mehr alle fehlenden Punkte gefunden. Daher ist der hier beschriebene Algorithmus nur bedingt für den Einsatz bei mehreren Reaktionsfortschrittsvariablen geeignet. Eine variable Enthalpie bzw. ein nicht-konstanter Mischungsbruch dagegen bereiten keine Probleme, da sie bei der räumlich homogenen Rechnung Erhaltungsgrößen sind.

# Kapitel 5

## Tabellierung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit

### 5.1 Motivation

Die Berechnung von Punkten auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit ist wegen der Steifheit chemischer Systeme sehr aufwendig. Darum ist es sinnvoll, einmal berechnete ILDM-Punkte in einer Tabelle zu speichern. Wird derselbe Punkt ein weiteres Mal benötigt, können die Daten aus der Tabelle eingelesen werden, was um Größenordnungen schneller ist als eine erneute Lösung des ILDM-Gleichungssystems 4.1. Allerdings erhält man schon bei vier Tabellenkoordinaten eine Tabelle, die über 100 MB groß ist und mehrere hunderttausend ILDM-Punkte umfaßt. Daher ist es nötig, eine Tabellierungsmethode zu finden, die einen schnellen Zugriff auf die Daten erlaubt.

### 5.2 Datenstruktur einer ILDM-Tabelle

#### 5.2.1 Binäre Suchbäume

Eine mögliche Lösung eines solchen Problems sind binäre Suchbäume. Eine Baumstruktur kann folgendermaßen rekursiv definiert werden [12]:

Eine Baumstruktur vom Grundtyp  $T$  ist entweder

- (1) eine leere Struktur oder
- (2) ein Knoten vom Typ  $T$  mit einer endlichen Zahl verknüpfter, voneinander verschiedener Baumstrukturen mit Grundtyp  $T$ , sogenannter Teilbäume.

Bei einem binären Baum ist jeder Knoten mit maximal zwei Teilbäumen verknüpft. Binäre Bäume können dazu verwendet werden, eine große Datenmenge darzustellen und deren Elemente nach einem geeigneten Schlüssel wiederzufinden. Man spricht von einem Suchbaum, wenn für jeden Knoten  $t_i$  alle Schlüssel im linken Teilbaum von  $t_i$  kleiner (oder gleich) und im rechten Teilbaum größer (oder gleich) als der Schlüssel von  $t_i$  sind [12].

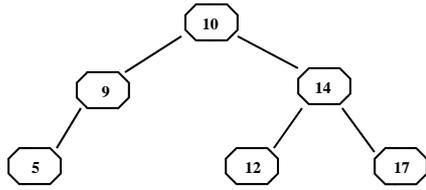


Abb. 5.1 Vollständig ausbalancierter Suchbaum. Zum Finden eines bestimmten Datensatzes werden maximal 3 Vergleiche benötigt.

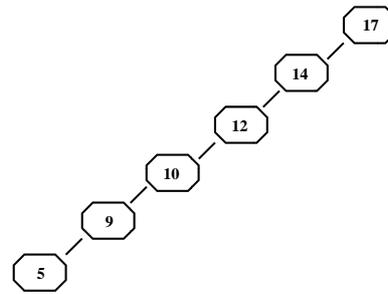


Abb. 5.2 Zu einer verketteten Liste degenerierter Suchbaum. Bis zu 6 Vergleiche sind für das Auffinden eines Datensatzes nötig.

Im vorliegenden Fall wurde als Schlüssel ein Vergleich des Koordinatentupels der Tabellierungskoordinaten verwendet. Zuerst wird die Größe der ersten Koordinate verglichen. Sind die beiden ersten Koordinaten gleich groß, so wird die Größe der zweiten Tabellierungsordinate verglichen usw. Da sich zwei ILDM-Punkte immer in mindestens einer Tabellierungsordinate unterscheiden, sofern sie nicht identisch sind, ist mit diesem Schlüssel eine eindeutige Sortierung der Datensätze möglich.

Der Vorteil von binären Suchbäumen ist, daß auch bei sehr großen Datenmengen ein Datensatz sehr schnell gefunden werden kann. Auf jeder Ebene  $m=(0,1,2,\dots)$  des Baumes können maximal  $2^m$  Datensätze untergebracht werden. Daher ist in einem vollständig ausbalancierten Suchbaum, der  $n$  Datensätze enthält, der Aufwand zum Finden eines einzelnen Datensatzes von der Ordnung  $\log(n)$  [15]. Unter einem vollständig ausbalancierten Suchbaum versteht man einen Suchbaum, bei dem alle Ebenen vollständig besetzt sind ausgenommen der untersten (Abbildung 5.1). Ohne Rebalancieren des Baumes, d. h. Umordnen der Baumstruktur, wird man allerdings nur in Ausnahmefällen einen solchen vollständig besetzten Baum erhalten. Wenn der Suchbaum mit einer sortierten Datenmenge aufgefüllt wird, entsteht sogar ein sogenannter entarteter Baum (Abbildung 5.2). Dieser entspricht einer verketteten Liste, und in ihm ist der Suchaufwand von der Ordnung  $n$ . Es ist also nötig sicherzustellen, daß ein relativ gut ausbalancierter Suchbaum entsteht, um den Aufwand, der für das Auffinden eines Punktes benötigt wird, gering zu halten. Andererseits müssen schnelle Algorithmen für das Rebalancieren des Baumes existieren.

### 5.2.2 AVL-Bäume

Ein guter Kompromiß zwischen beiden Anforderungen stellen die AVL-Bäume (Adelson-Velskii-Landis-Bäume) dar. Bei ihnen wird eine Strukturinvariante für den binären Suchbaum definiert. Diese wird nach dem Einfügen oder Löschen von Datensätzen durch Rebalan-

cieroperationen aufrechterhalten. Die Strukturinvariante beim AVL-Baum lautet: Ein AVL-Baum ist ein binärer Suchbaum, in dem sich für jeden Knoten die Höhen zweier Teilbäume um höchstens 1 unterscheiden.

Bei den Rebalancieroperationen wird geprüft, ob die Strukturinvariante verletzt ist. Ist dies der Fall, so kann durch das Ändern von wenigen Verknüpfungen in der Baumstruktur die Balance wiederhergestellt werden. Hierbei reicht die Unterscheidung von wenigen Fällen [12]. Da dabei keine Daten kopiert werden, sondern nur einige Zeiger geändert werden müssen, ist der Zeitaufwand für das Aufrechterhalten der Strukturinvariante relativ gering. Es kann gezeigt werden, daß bei AVL-Bäumen der Suchaufwand gegenüber dem bei einem vollständig ausbalancierten Suchbaum um maximal 44 % erhöht ist [12].

## 5.3 Zugriff auf gespeicherte Daten

### 5.3.1 Interpolation

Bisher wurde nur die Datenstruktur zum Speichern einzelner ILDM-Punkte diskutiert. Diese gespeicherten Punkte liegen auf einem kartesischen Gitter mit fester oder adaptiver Schrittweite (siehe 5.4). Um Daten für ein beliebiges Koordinatentupel zu erhalten, muß eine Interpolation zwischen den tabellierten Punkten durchgeführt werden. Es findet eine lineare Interpolation zwischen  $2^n$  benachbarten Punkten statt. Durch die lineare Interpolation ist sichergestellt, daß sich alle gespeicherten Daten stetig ändern. Allerdings stellt dieser lineare Ansatz nicht sicher, daß auch die Ableitungen dieser Daten stetig sind. An der Grenze der Interpolationzellen wird im Allgemeinen die Ableitung der Daten unstetig sein. Dies ist bei einer Implementation in einen CFD-Code zu berücksichtigen, um numerische Probleme zu vermeiden.

Um Stetigkeit der Ableitung zu gewährleisten, müßte ein Ansatz höherer Ordnung bei der Interpolation gewählt werden. Dann werden aber auch mehr Punkte benötigt, zwischen denen die Interpolation stattfindet. Dadurch wird der Zeitaufwand, der zum Auslesen der Daten nötig ist, deutlich erhöht. Zum einen müssen mehr Punkte in der Tabelle gefunden werden, zum anderen wird in der Regel durch diesen Ansatz höherer Ordnung auch der Aufwand für den eigentlichen Interpolationsprozeß deutlich steigen.

Da das Auffinden einzelner Datensätze in der Tabelle sehr schnell möglich ist, konnte auf eine explizite Speicherung der Struktur der Interpolationszellen verzichtet werden. Dies verringert den für eine ILDM-Tabelle benötigten Speicherplatz deutlich, und es ist dadurch möglich, ohne großen Aufwand einen anderen Interpolationsansatz zu implementieren. Wegen des modularen Aufbaus der ILDM-Software muß dazu nur die Routine zum Auswählen der für die Interpolation nötigen Datensätze und der Interpolationsalgorithmus geändert werden. Wird für diesen neuen Interpolationsansatz dasselbe Koordinatengitter verwendet, können sogar schon bestehende ILDM-Tabellen weiter benutzt werden.

### 5.3.2 Schneller Zugriff auf Daten

Oft werden von einem CFD-Programm verschiedene Daten für den gleichen Koordinatensatz benötigt. Zum Beispiel wird als erstes die Reaktionsgeschwindigkeit der Reaktionsfortschrittsvariablen benötigt, später vielleicht die Dichte für den gleichen ILDM-Punkt. Oder aber die Koordinaten haben sich während eines Zeitschritts im CFD-Programm nur sehr gering geändert, so daß für die Interpolation die gleiche Tabellenzelle verwendet wird. Um zu verhindern, daß in solchen Fällen jedesmal neu alle für die Interpolation nötigen Punkte in der Tabelle gesucht werden müssen, werden die Zeiger auf die benötigten Datensätze in einem Feld gespeichert. Der Benutzer der ILDM-Routinen kann mit Hilfe eines Indizes im Interface der ILDM-Routinen auf diesen Datensatz zugreifen. Es wird dann automatisch geprüft, ob die im Feld stehenden Zeiger auf die benötigten Datensätze zeigen. Falls dies nicht der Fall ist, werden die benötigten Datensätze in der Tabelle gesucht und die Zeiger in diesem Feld aktualisiert. Durch geschicktes Nutzen dieses schnellen Zugriffes auf die Daten kann die benötigte Rechenzeit deutlich verringert werden; bei Tabellen mit einer großen Anzahl von Koordinatenachsen ist die Zeitersparnis besonders groß.

### 5.3.3 In der ILDM-Tabelle gespeicherte Daten

Bei Tabellierungskordinaten, zu denen ein ILDM-Punkt gefunden werden konnte, werden die Spezieszusammensetzung, die Reaktionsgeschwindigkeit der Fortschrittsvariablen und einige wichtige physikalische Eigenschaften wie die Wärmekapazität oder die mittlere molare Masse ect. gespeichert. Zusätzlich wird eine Variable gespeichert, die anzeigt, ob es sich bei dem gespeicherten Punkt um einen ILDM-Punkt handelt. Um die Verwaltung der Tabelle zu erleichtern, werden noch einige wenige Daten, die die Baumstruktur betreffen, gespeichert. Zu einem gegebenen Koordinatensatz kann es aber vorkommen, daß kein ILDM-Punkt gefunden werden konnte. In diesem Fall wird ein einfaches Modell verwendet, das mit Hilfe einiger weniger Spezies die Mischung richtig beschreibt und die Reaktionsgeschwindigkeit der Fortschrittsvariablen zu null setzt. In diesem Fall ist ein großer Teil des Speziesvektor null. Dieser Speziesvektor macht allerdings den größten Teil der zu speichernden Daten aus. Um Speicherplatz zu sparen, wurde in diesem Fall auf das Speichern der Daten in der Tabelle verzichtet. Dies ist sinnvoll, da die Berechnung der Spezieszusammensetzung mit Hilfe diesen einfachen Modells um Größenordnungen schneller ist als die Berechnung eines ILDM-Punktes. Allerdings bleibt die Bestimmung der zugehörigen Enthalpie und Wärmekapazität relativ zeitaufwendig. Darum werden diese beiden Größen auch in diesem Fall gespeichert.

Es ist möglich, auf die Speicherung eines Teils der Spezies in der Tabelle zu verzichten, wenn man nur an einem kleinen Teil des Speziesvektors interessiert ist. Dadurch wird der benötigte Speicherplatzbedarf drastisch verringert. Allerdings wird es in der Regel nicht mehr möglich sein, eine solche Tabelle in situ zu erweitern, da ein solcher reduzierter Speziesvektor

meist nicht als Startwert für die numerische Berechnung geeignet ist. Es bietet sich in einem solchen Fall an, nach Fertigstellen der ILDM-Tabellen eine Look-up-Tabelle zu erstellen, mit der die Berechnung des Verbrennungssystems durchgeführt wird.

## 5.4 Tabellierungskoordinaten

### 5.4.1 Wahl der Tabellenkoordinaten

Ein ILDM-Punkt ist durch die Temperatur, den Druck, die Mischung und durch die  $m$  Fortschrittsvariablen eindeutig beschrieben. Da von Lewis-Zahl gleich eins ausgegangen wird, kann die Mischung durch einen Mischungsbruch beschrieben werden. Daher kann eine ILDM-Tabelle maximal diese  $3+m$  Koordinaten besitzen.

Anstelle der Temperatur kann auch die Enthalpie als Koordinate verwendet werden. Ob es sinnvoll ist, die Temperatur oder die Enthalpie als Koordinate zu verwenden, hängt vom im CFD-Programm behandelten Problem ab. Wird im CFD-Programm eine Gleichung für die Temperatur verwendet, so sollte auch die Temperatur in der Tabelle als Tabellierungscoordinate verwendet werden. Ansonsten muß bei jedem Tabellenzugriff eine aufwendige Bestimmung der zugehörigen Enthalpie durchgeführt werden. Dies verlangsamt den Zugriff auf die Daten sehr deutlich, oft um einen Faktor größer als zehn.

Oft werden bei einer Simulation nur Teile der gesamten niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit verwendet. So wird häufig der Druck als konstant angenommen, oder bei vorgemischten Flammen ist die Mischung für die gesamte Simulation konstant. In diesem Fall kann zwar auch eine allgemeine Tabelle benutzt werden, in der die gesamte niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit gespeichert ist. Allerdings kann durch Erstellung einer Tabelle speziell für diese Problemstellung die Zugriffszeit deutlich verringert werden, denn auch in der ILDM-Tabelle kann die entsprechende Größe als konstant angenommen werden. Dadurch verringert sich die Dimension der Tabelle um eins, und die Zugriffszeit auf die Daten wird sich ungefähr halbieren. Zudem wird sich die Größe der Tabelle um mehr als eine Größenordnung verringern. Dies ermöglicht eine schnellere Erzeugung der ILDM-Tabelle, und zudem ist es dann möglich, ein feineres Koordinatengitter zu verwenden, um Interpolationsfehler zu minimieren.

### 5.4.2 ILDM-Tabellen für nicht-isobare Systeme

In vielen technischen Anwendungen ist der Druck nicht konstant. Daher werden auch ILDM-Tabellen benötigt, die den ganzen Druckbereich abdecken. Es gibt zwei verschiedene Möglichkeiten, einen variablen Druck in das ILDM-Programm zu implementieren.

Der Druck kann wie die anderen Tabellierungsachsen behandelt werden, oder aber es werden ILDM-Tabellen für einen konstanten Druck erstellt und es findet eine Interpolation zwischen diesen Tabellen statt. Die zweite Implementation hat allerdings einige Vorteile. Viele ILDM-Tabellen für einen konstanten Druck sind schon über 100 MB groß. Kommt bei ihnen der Druck als weitere Koordinate hinzu, die den gesamten Druckbereich umfaßt, so würde man Tabellen erhalten, die einen Speicherplatz von über einem Gigabyte benötigen. Sowohl die Erzeugung einer solchen Tabelle als auch deren Nutzung wären mit großen Schwierigkeiten verbunden. Oft wird aber nur ein kleiner Teil des Druckbereichs benötigt. Bei dem zweiten Implementationsansatz können schon bestehende ILDM-Tabellen für einen konstanten Druck verwendet werden, die in dem benötigten Druckbereich liegen. Man erstellt also einige ILDM-Tabellen für häufig benötigte Drücke und wählt dann bei einer Rechnung mit einem variablen Druck die Tabellen aus, die zur Interpolation nötig sind. Diese Methode verringert in vielen Anwendungen den benötigten Speicherplatz, und auch der Rechenaufwand für die Erzeugung einer neuen Tabelle wird verringert, da schon bestehende Tabellen für isobare Bedingungen verwendet werden können. Bei dieser Implementation kann außerdem die Schrittweite in der Druckkoordinate frei nach physikalischen Gesichtspunkten gewählt werden. Dies verringert bei einer gegebenen Interpolationsgenauigkeit die Anzahl der benötigten Stützstellen in dieser Koordinatenrichtung deutlich.

## 5.5. Adaptive Verfeinerung des Tabellengitters

### 5.5.1 Verkleinerung der Gitterschrittweite im Rahmen der Numerik

Bei der Wahl der Gitterschrittweite ist einerseits auf benötigten Aufwand zur Erzeugung einer Tabelle zu achten, andererseits muß berücksichtigt werden, daß zur numerischen Berechnung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit Schätzwerte benötigt werden, die nicht allzusehr von der Lösung entfernt sein dürfen. Wird das Tabellengitter zu grob gewählt, so kann es in Teilen des Tabellierungsbereiches zu numerischen Schwierigkeiten führen. Dieser Effekt ist vor allem bei sehr steifen chemischen Systemen, wie z.B. bei hohen Drücken, zu beobachten. Damit man nicht gezwungen ist, für den gesamten Tabellierungsbereich ein feines Gitter zu wählen, wird in solchen Bereichen die Koordinatenschrittweite verringert. Diese Punkte, die nicht auf dem eigentlichen Tabellengitter liegen, werden zwar in der Tabelle gespeichert, doch sie werden nicht für die Interpolation verwendet. Wenn im Folgenden von einem festen oder adaptiven Tabellengitter die Rede ist, bezieht sich dies auf das für die Interpolation verwendete Gitter. Die hier besprochene Verfeinerung der Gitterschrittweite im Rahmen der numerischen Berechnung kann in beiden Fällen angewendet werden.

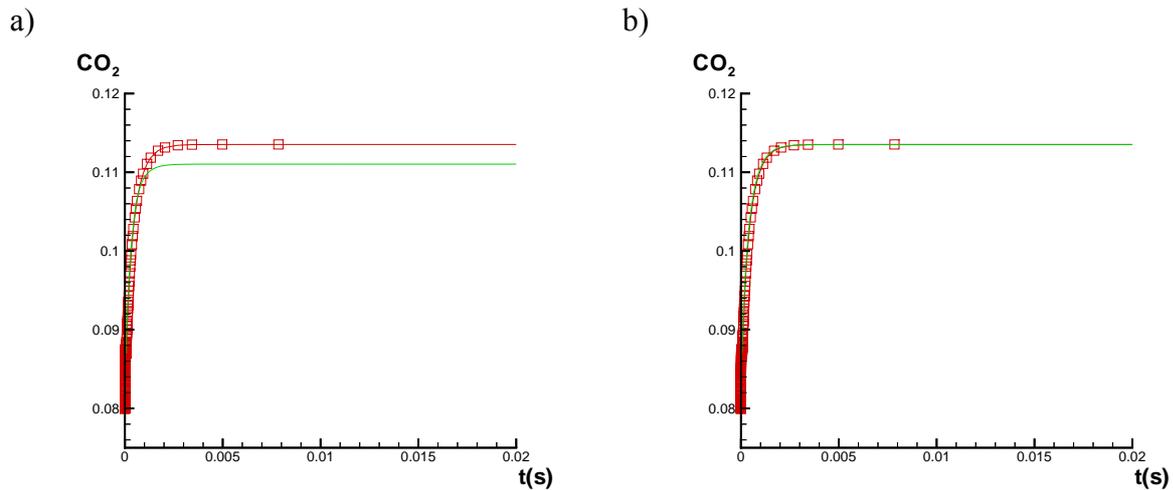


Abb. 5.3 Simulation einer homogenen, stöchiometrischen Methan-Luft-Mischung, bei konstantem Druck und bei adiabatischen Bedingungen.

Rote Rechtecke: Simulation mit detaillierter Chemie. Grüne Linie: Simulation mit der ILDM-Methode. a) Verwendung eines groben Koordinatengitters (Gitterschrittweite für Massenbruch der Fortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$   $5 \cdot 10^{-3}$ ). b) feines Tabellierungsgitter (Gitterschrittweite  $5 \cdot 10^{-4}$ ). Bei Verwendung des groben Gitters sind deutlich Interpolationsfehler in der Nähe des Gleichgewichts zu sehen.

### 5.5.2 ILDM-Tabellen mit konstanter Gitterschrittweite

Bei vielen Anwendungen ist die Verwendung einer ILDM-Tabelle mit konstanter Gitterschrittweite möglich. Für jede Koordinate wird eine Schrittweite explizit vorgegeben, und es findet eine Interpolation zwischen Punkten statt, die auf diesem kartesischen Gitter liegen. Die Verwendung eines solchen konstanten Gitters ist möglich, wenn die benötigte Genauigkeit nicht allzu hoch ist und man ein hinreichend feines Gitter wählen kann. Bei Tabellen, die nur einen kleinen Bereich der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit abdecken müssen oder nur wenige Fortschrittsvariablen benutzen, kann die Gitterschrittweite hinreichend klein gewählt werden, so daß die Interpolationsfehler zu vernachlässigen sind. In solchen Fällen ist die Verwendung eines Gitters mit fester Schrittweite sinnvoll, da hier der Zugriff auf Daten deutlich schneller ist als bei Tabellen mit adaptiver Schrittweite des Koordinatengitters. Bei einer Tabelle mit adaptiver Koordinatenschrittweite muß nämlich geprüft werden, ob bei der verwendeten Interpolationszelle das Verfeinerungskriterium erfüllt ist und gegebenenfalls muß auf weitere Punkte zugegriffen werden, die auf einem feineren Gitter liegen.

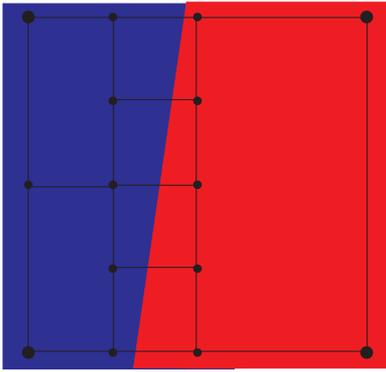


Abb. 5.4 Beispiel für eine komplett verfeinerte Interpolationzelle. Im blauen Bereich können ILDM-Punkte gefunden werden, im roten Bereich nicht. Die schwarzen gefüllten Kreise sind Punkte in der Tabelle. Bei diesem Beispiel wurden maximal zwei Verfeinerungen in jeder Richtung durchgeführt, wobei jeweils die Schrittweite halbiert wurde.

### 5.5.3 Motivation für die Verwendung eines adaptiven Koordinatengitters

In vielen Bereichen einer ILDM-Tabelle ist ein relativ grobes Gitter ausreichend, um einen akzeptablen Interpolationsfehler zu erhalten. Simulationen von räumlich homogenen Systemen zeigen aber, daß speziell in der Nähe des Gleichgewichts ein feines Tabellengitter nötig ist, um große Interpolationsfehler zu vermeiden. Wird das Gitter zu grob gewählt, so kann es dazu führen, daß der vorhergesagte Gleichgewichtspunkt deutlich vom exakten Wert abweicht (Abb. 5.3). In diesem Bereich ist also die Verwendung eines feinen Gitters nötig, um die Interpolationsfehler zu minimieren. Besonders bei Verwendung von mehreren Fortschrittsvariablen ist dieser Effekt deutlich sichtbar, da sich die Interpolationsungenauigkeiten für die einzelnen Fortschrittsvariablen akkumulieren.

Ein weiterer Bereich, in dem eine Verfeinerung des Koordinatengitters sinnvoll erscheint sind Interpolationszellen, bei denen gemittelt wird zwischen ILDM-Punkten und Punkten, zu denen keine ILDM gefunden werden konnte. Nach einer Verfeinerung wird je nach Lage des benötigten Punktes eine Mittelung, bei der nur ILDM-Punkte benutzt werden, möglich.

Bei der Simulation räumlich homogener Systeme kann für die gesamte Tabelle ein feines Gitter verwendet werden, da hier als Tabellierungsachsen nur die Fortschrittsvariablen verwendet werden und eine In-situ-Generierung der Tabelle den benötigten Bereich der niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeit weiter reduziert. Bei vielen anderen Problemstellungen wird dagegen die Größe der ILDM-Tabelle und die benötigte Rechenzeit zur Erzeugung der Tabelle die Verfeinerung der Schrittweite limitieren. Bei Tabellierung der gesamten niedrigdimensionalen Mannigfaltigkeit, wie sie für die Simulation von turbulenten Verbrennungssystemen mit Hilfe der Presumed-PDF-Methode benötigt wird, würde eine Verfeinerung der Schrittweite um einen Faktor 10 bei den beiden Fortschrittsvariablen und dem Mischungsbruch die Tabellengröße um einen Faktor  $10^3$  erhöhen. Dies führt zu einem nicht vertretbaren Rechenzeit- und Speicherplatzbedarf. Darum ist es wichtig, nur in den Bereichen ein feines Gitter zu verwenden, in denen es auch benötigt wird.

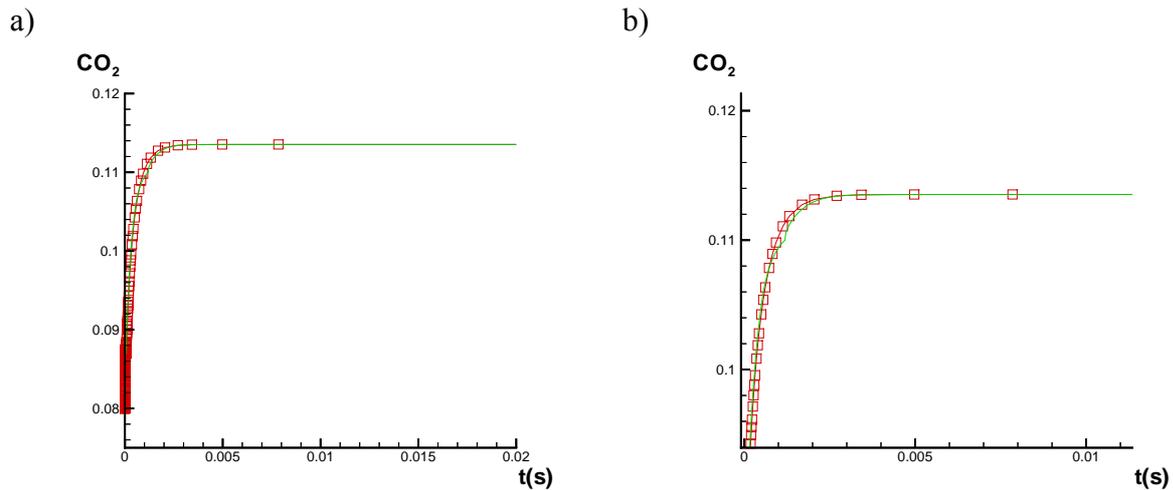


Abb. 5.5 Simulation des gleichen homogenen Methan-Luft System wie in Abb. 5.3 unter Verwendung der adaptiven Verfeinerung des Tabellengitters. Die Schrittweite des Tabellengitters beträgt für die Massenbrüche der beiden Fortschrittsvariablen  $5 \cdot 10^{-3}$ . Die Schrittweite wird in jeder Verfeinerungsstufe um den Faktor 0,25 verringert bei maximal 2 Verfeinerungsstufen pro Koordinate. a) gesamte Simulation, b) Ergebnisse in der Nähe des Gleichgewichts.

Es sind kaum Abweichungen zwischen Simulation mit detaillierter Chemie (rote Quadrate) und mit der ILDM-Methode (grüne Linie) zu sehen. Nur bei  $w_{CO_2} \approx 0,11$  sind sehr kleine Abweichung zu beobachten.

#### 5.5.4 Algorithmus zur adaptiven Verfeinerung der Tabellenschrittweite

Die sicherste Methode zu unterscheiden, ob eine Verfeinerung des Gitters nötig ist oder nicht, wäre eine Abschätzung des Interpolationsfehler vorzunehmen und bei Überschreiten einer gewissen Grenze die Interpolationzelle zu verfeinern. Unglücklicherweise werden für eine solche Abschätzung neben den Daten an den verwendeten Gitterpunkten zusätzliche Informationen von anderen ILDM-Punkten benötigt. So könnte zum Beispiel ein weiterer Punkt in der Mitte der Interpolationzelle berechnet und die interpolierten Werte mit den Daten dieses zusätzlich berechneten Punktes verglichen werden. Eine solche Methode würde eine relativ gute Abschätzung des Interpolationsfehlers erlauben; sie ist allerdings mit dem Berechnen von zusätzlichen ILDM-Punkten verbunden. Um einen solchen Aufwand zu vermeiden, wurden zwei sehr einfache Verfeinerungskriterien verwendet, die beide ohne zusätzliche Informationen von anderen Punkten auskommen. Zum einen soll verfeinert werden, wenn zumindest für eine Fortschrittsvariable der Gleichgewichtswert nahezu erreicht ist, zum anderen, wenn zwischen ILDM-Punkten und Punkten, für die keine ILDM gefunden wird, interpoliert wurde. Um die Koordinate zu bestimmen, deren Schrittweite verkleinert werden soll, wird untersucht, bei welcher Tabellenachse das Kriterium besonders stark verletzt wird. So wird

z.B. geprüft, in welcher Koordinatenrichtung die Reaktionsgeschwindigkeit der Fortschrittsvariable gegen null geht. Die neue Schrittweite und die Anzahl der maximalen Verfeinerungsstufen in jeder Koordinate können dabei je nach Problemstellung frei gewählt werden.

### 5.5.5 Vergleich der Tabellierung mit fester und adaptiver Schrittweite

Der Einfluß der gewählten Verfeinerungskriterien auf den Interpolationsfehler wurde in homogenen Systemen untersucht. So wurde ein homogenes stöchiometrisches Methan-Luft-Gemisch untersucht, wobei bei der Simulation mit der ILDM-Methode unter Verwendung der beiden Fortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  als feste Gitterschrittweiten  $5 \cdot 10^{-3}$  und  $5 \cdot 10^{-4}$  gewählt wurden. Bei dem groben Tabellierungsgitter ist besonders in der Nähe des Gleichgewichts ein deutlicher Interpolationsfehler zu beobachten, während beim feinen Gitter keine Abweichungen von der Simulation mit detaillierter Chemie zu sehen sind (Abb. 5.5). Bei der Simulation desselben chemischen System und bei Wahl eines adaptiven Tabellierungsgitters wurde als Schrittweite vor der Verfeinerung wieder  $5 \cdot 10^{-3}$  gewählt. Allerdings wurde, wenn eines der Verfeinerungskriterien verletzt wurde, der Gitterabstand um einen Faktor 0,25 verringert bei maximal 2 Verfeinerungsstufen für jede der beiden Koordinaten. Die Simulationsergebnisse zeigen, daß die adaptive Gitterverfeinerung die Interpolationsfehler in den entscheidenden Bereichen deutlich verringert hat (Abb. 5.5).

Ein weiterer wichtiger Punkt ist die Abschätzung des zusätzlichen Aufwandes zu Erzeugung einer Tabelle mit adaptiver Verfeinerung. Dazu wurde wieder eine zweidimensionale Tabelle für das stöchiometrische Methan-Luft-System mit den Fortschrittsvariablen als Tabellierungskordinaten verwendet. Es wurde die gesamte niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit unter den Randbedingungen von stöchiometrischer Mischung und konstanter Enthalpie gespeichert. Als Schrittweite für die unverfeinerten Koordinatenachsen wurde in beiden Fällen  $4 \cdot 10^{-3}$  gewählt. Im adaptiven Fall sollen die Interpolationszellen maximal zwei Mal in jeder Richtung halbiert werden. Bei Verwendung eines festen Gitters umfaßt die resultierende Tabelle ca. 350 KByte, bei Verwendung des Gitters mit adaptiver Verfeinerung ca. 950 KByte.

Wird eine Tabelle erzeugt, die die gleiche Schrittweite wie die kleinste Schrittweite ( $10^{-3}$ ) bei dem adaptiven Gitter besitzt, so beträgt die Größe dieser Tabelle ca. 4250 KByte. Dieses Beispiel zeigt, daß man mit Hilfe des adaptiven Tabellengitters die Größe einer Tabelle drastisch reduziert kann, ohne den Interpolationsfehler allzu stark zu erhöhen.

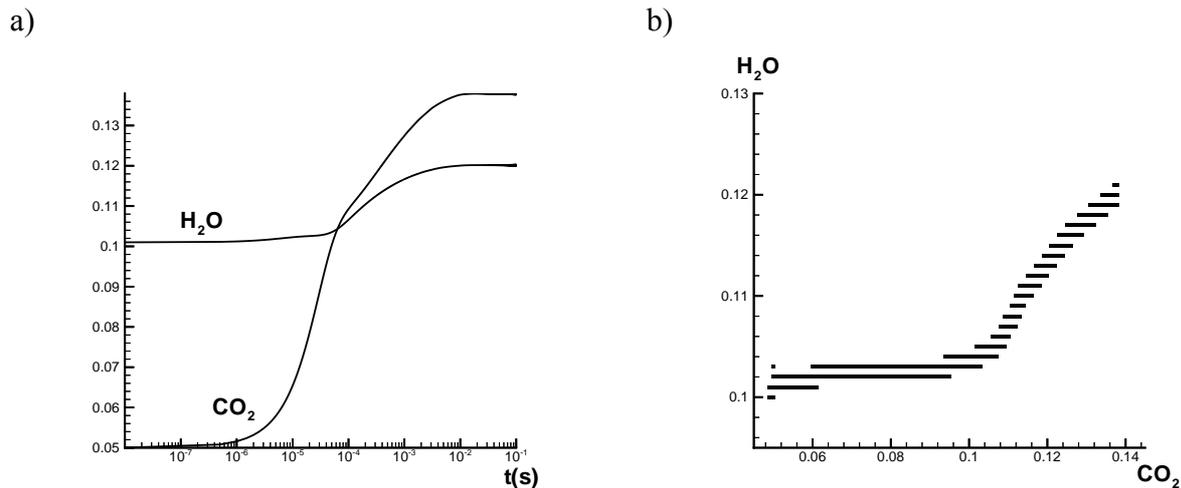


Abb. 5.6 Anwendung der In-situ-Tabellierung bei der Simulation eines räumlich homogenen, stöchiometrischen Methan-Luft-Systems a) Zeitlicher Verlauf der Massenbrüche der Fortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$ , b) In-situ erzeugte ILDM-Tabelle. Bei Beginn der Rechnung ist keine ILDM-Tabelle vorhanden, sie wird während der CFD-Rechnung erzeugt. Es ist deutlich zu sehen, daß nur ein sehr kleiner Teil der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit für die Rechnung benötigt und daher in-situ berechnet wird ( in a) schwarzer Bereich).

## 5.6 In-situ-Generierung von ILDM-Tabellen

Ein weiterer wichtiger Bestandteil des Tabellierungsprogramms ist die Möglichkeit der In-situ-Erzeugung einer ILDM-Tabelle. Hierbei werden die vom CFD-Programm benötigten ILDM-Punkte während des Ablaufs der CFD-Berechnung bestimmt und in der ILDM-Tabelle gespeichert. Man startet dabei ohne oder mit einer unvollständigen Tabelle und füllt sie dann soweit wie nötig auf. Bei einem weiteren Durchlauf der CFD-Berechnung sind dann die benötigten Punkte schon in der Tabelle gespeichert, und das CFD-Programm kann die Punkte ohne deren erneute Berechnung einlesen. Diese Methode ist in vielen Anwendungen sehr vorteilhaft, da oft nur ein kleiner Teil der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit benötigt wird.

So wird für eine Simulation eines räumlich homogenen chemischen Systems nur ein ein-dimensionaler Unterraum der ILDM verwendet (Abb. 5.6). Die In-situ-Erzeugung einer ILDM-Tabelle gewinnt mit zunehmender Anzahl von Fortschrittsvariablen an Bedeutung, da hier der Aufwand zur Generierung einer vollständigen Tabelle mit jeder Dimension drastisch zunimmt. Eine detaillierte theoretische Untersuchung ist bei [14] zu finden. Der Erfolg der In-situ-Tabellierung ist neben der physikalischen Problemstellung auch von den im CFD-Programm verwendeten Modellen abhängig. Bei einer Presumed-PDF-Methode zur Lösung des Schließungsproblems bei der Turbulenz wird zum Beispiel die gesamte niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit benötigt. Dort ist zwar auch die In-situ-Erzeugung einer

ILDm-Tabelle möglich, sie wird aber zu keiner nennenswerten Verringerung der Tabellengröße führen. Auch die verwendeten numerischen Verfahren und die Auswahl der Startwerte haben einen starken Einfluß auf die Anzahl der zu berechnenden ILDM-Punkte und damit auf den tatsächlichen Erfolg der In-situ-Tabellengenerierung. So zeigt sich bei der Simulation eines homogenen Systems mit der ILDM-Methode, daß bei Verwendung eines semi-impliziten Lösungsverfahrens zur Lösung der Erhaltungsgleichungen (LIMEX) deutlich mehr ILDM-Punkte benötigt werden als bei Verwendung eines expliziten Euler-Verfahrens. Daher ist das Euler-Verfahren meist deutlich schneller, trotz der sehr kleinen Zeitschritte, die wegen der Steifheit des chemischen Systems zu verwenden sind.

# Kapitel 6

## Modelle für Bereiche, in denen keine ILDM existiert

### 6.1 Bereiche im Zustandsraum, die nicht mit niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten zu beschreiben sind

Wie in Abschnitt 3.8 ausführlich diskutiert, treten bei der Simulation von Verbrennungssystemen häufig Zustände auf, die nicht auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit liegen. Liegt dieser Zustand in der Nähe der ILDM, so werden die schnellen Relaxationsprozesse für eine schnelle Relaxation auf die Mannigfaltigkeit sorgen. Dies wird bei einer Simulation in der Regel durch eine Projektion des Zustands auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit erreicht. Es gibt aber Bereiche, in denen keine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit existiert. So wird für nahezu unverbrannte Gemischzusammensetzungen in aller Regel keine zwei- oder dreidimensionale Mannigfaltigkeit gefunden. Solche Zustände können dann nicht mit der Methode der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit beschrieben werden. Bei der Simulation der meisten Verbrennungssysteme existieren aber solche Zonen und müssen daher in der Simulation berücksichtigt werden. In diesem Kapitel werden mögliche Modelle diskutiert, die dort zur Anwendung kommen können. Welche Modelle erfolgreich genutzt werden können, hängt zum einen stark von der Implementierung der ILDM-Methode im CFD-Programm, zum anderen vom physikalischen Verbrennungssystem ab.

### 6.2 Implementiertes Standardmodell

#### 6.2.1 Modell für die Dichte und die Enthalpie

In vielen CFD-Programmen wird die Beschreibung der Chemie mit Hilfe niedrig-dimensionaler Mannigfaltigkeiten dadurch implementiert, daß Erhaltungsgleichungen für die Reaktionsfortschrittsvariablen gelöst werden. Physikalische Größen wie die Dichte oder die Spezieszusammensetzung sind abhängig von den Parametern  $\bar{\theta}$  und werden aus der ILDM-Tabelle eingelesen (siehe Kapitel 10). Kann für einen Bereich des Verbrennungssystems kei-

ne niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit gefunden werden, so werden trotzdem Werte für die Reaktionsgeschwindigkeit der Fortschrittsvariablen und für Größen wie die Dichte und evtl. die Temperatur/Enthalpie benötigt.

Meistens tritt in solchen Bereichen das Phänomen auf, daß die gesamte chemische Reaktion langsam ist [8], [9]. Dann ist die Zeitskala der chemischen Reaktionen langsamer als die der physikalischen Prozesse, wie z.B. die der Diffusion. Der Zustand des Systems ändert sich im Wesentlichen aufgrund der physikalischen Mischung. In einem solchen Fall kann die Reaktionsgeschwindigkeit für die Fortschrittsvariablen als null angenommen werden, ohne daß ein signifikanter Fehler bei den Simulationsergebnissen auftritt.

Es bleibt noch die Frage, wie man vernünftige Werte für die Dichte und die Temperatur/Enthalpie erhalten kann. Ein Modell für diese Größen sollte unabhängig von ILDM-Punkten in der Tabelle sein, da sonst Probleme bei der In-situ-Tabellierung auftreten. Daher ist die Modellierung der Spezieszusammensetzung durch z. B. eine Interpolation zwischen dem unverbrannten Gemisch und ILDM-Punkten ungünstig.

Es wurde der Ansatz gewählt, daß die Massenbrüche für einige häufig vorkommende Spezies entsprechend dem Mischungsbruch und den Reaktionsfortschrittsvariablen gewählt werden. Exemplarisch soll hier der Algorithmus für eine zweidimensionale Mannigfaltigkeit mit  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  als Fortschrittsvariablen vorgestellt werden:

1.  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  werden entsprechend den Fortschrittsvariablen gewählt,
2.  $\text{N}_2$  entsprechend dem N-Elementmassenbruch.
3. Der verbleibender Kohlenstoff soll in Form des Brennstoffs vorliegen.

Ist dies aufgrund der H-Bilanz nicht möglich, sollen die nicht als Brennstoff vorliegenden C-Atome zu CO reagiert sein.

4. Der noch nicht verbrauchte Wasserstoff soll zu  $\text{H}_2$  reagieren.
5. Der übrige Sauerstoff soll in Form von  $\text{O}_2$  vorliegen.

Diese Spezieszusammensetzung ist zwar recht unphysikalisch, ist aber in der Lage, die Temperatur/Enthalpie in der richtigen Größenordnung vorherzusagen. Im Allgemeinen wird die Temperatur überschätzt, da keine energiereichen Radikale berücksichtigt werden. Diese Spezieszusammensetzung soll keineswegs zur Vorhersage der Gemischzusammensetzung dienen, sondern nur dazu im unverbrannten Bereich der Flamme die Dichte in der richtigen Größenordnung vorherzusagen. Daher wurden bei der Simulation der laminaren Flammen im Bereich, in denen keine ILDM gefunden werden konnte, keine Konzentrationen für Spezies eingezeichnet, die nicht als Reaktionsfortschrittsvariablen verwendet wurden. (Kapitel 10)

Dieses Modell wurde erfolgreich zur Simulation von laminaren Vormischflammen und von turbulenten nicht-vorgemischten Masri-Brennern eingesetzt [18].

Dieses Modell hat aber prinzipiell den Nachteil, daß an der Grenze zu dem mit ILDM-simulierten Bereich die Dichte( $\bar{\theta}$ ) nicht mehr stetig verläuft. Durch die lineare Interpolation innerhalb der ILDM-Tabelle werden die an das CFD-Programm übergebenen Werte zwar

stetig, doch erhält man im Grenzbereich sehr starke Gradienten, was unter Umständen zu numerischen Schwierigkeiten führen kann.

## 6.2.2 Modell für die ILDM-Implementierung mit Skelettspezies

Bei der ILDM-Implementierung mit Skelettspezies wird eine Erhaltungsgleichung für alle Spezies gelöst, die für die Berechnung der Dichte und der Enthalpie von Bedeutung sind. Dabei ergibt sich die Reaktionsgeschwindigkeit aus einem Term entlang der ILDM und einem Term, der die Relaxationsprozesse modelliert [14].

Bei dieser Implementation wird im Bereich, für den keine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit existiert, die Reaktionsgeschwindigkeit der Skelettspezies als null angenommen. Wie oben geschildert, ist diese Annahme mit einem vertretbaren Fehler verbunden, da in solchen Bereichen meist die physikalischen Transportprozesse geschwindigkeitsbestimmend sind.

Die Dichte und die Enthalpie brauchen dann nicht mehr über eine willkürliche Spezieszusammensetzung modelliert werden, und es werden auch keine unphysikalisch hohen Gradienten an der Grenze zu dem mit ILDM beschriebenen Bereich auftreten. Diese Implementation hat allerdings den großen Nachteil, daß der Term, der die Relaxation auf die Mannigfaltigkeit simuliert, nur durch ein Modell beschrieben werden kann. Zudem müssen Erhaltungsgleichungen für alle Skelettspezies gelöst werden, was mit einem erheblichen Mehraufwand verbunden ist [14].

## 6.3 Kopplung mit einem Zündmodell

In vielen instationären Verbrennungssystemen spielen Zündprozesse eine entscheidende Rolle. Die ILDM-Methode kann aber Zündprozesse normalerweise nicht beschreiben. Die in 6.2 beschriebene Methode, den Bereich zu behandeln, in dem keine ILDM existiert, vernachlässigt dagegen die chemischen Zündprozesse. Erfolgt die Zündung des Gemisches aufgrund physikalischer Transportprozesse, so ist dies möglich. Ist aber die Selbstzündung entscheidend, so wird bei diesem Modell gar keine Zündung eintreten. Um trotzdem solche Anwendungen mit der ILDM-Methode beschreiben zu können, muß ein Zündmodell mit der ILDM-Methode gekoppelt werden.

Eine Kopplung zwischen beiden Modellen wurde in der Dissertation von C. Correa beschrieben [19]. Ziel war es, einen Dieselmotor zu simulieren und eine Vorhersage über den Schadstoffausstoß zu treffen. Aufgrund der komplexen dreidimensionalen Geometrie war es lediglich möglich, eine eindimensionale ILDM zu verwenden. Diese wurde mit einem Zünd-

modell gekoppelt, das neben der Mischung und der Temperatur ebenfalls mit nur einer Variable den Ablauf der Zündung beschreibt.

War der CO-Massenbruch bei der Simulation größer als 0,1, so wurde die Chemie mit Hilfe der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit beschrieben; für kleinere Werte wurden die Reaktionsgeschwindigkeit und Spezieszusammensetzung mit Hilfe des Zündmodells beschrieben. Mit dieser Methode war es möglich, die ILDM-Methode erfolgreich zur Simulation eines Dieselmotors einzusetzen. Sowohl der zeitliche Druckverlauf als auch die Bildung von  $\text{NO}_x$  Emissionen konnte erfolgreich vorhergesagt werden [19].

# Kapitel 7

## Parallelisierung des Programms zur Generierung von ILDM-Tabellen

### 7.1 Motivation für die Parallelisierung

Die Berechnung von ILDM-Punkten ist numerisch sehr aufwendig. Daher dauert auf einer Workstation die Erzeugung einer ILDM-Tabelle mit der Enthalpie, dem Mischungsbruch und zwei Fortschrittsvariablen als Tabellierungsachsen schon mehrere Wochen, wenn der gesamte physikalisch mögliche Bereich tabelliert werden soll. Bei Verwendung weiterer Achsen, z. B. mehr Fortschrittsvariablen, steigt der Zeitaufwand weiter rapide an. Mit jeder weiteren Tabellenkoordinate erhöht sich der Rechenzeit- und Speicherplatzbedarf um einen Faktor von ca. 20-100, je nachdem, wie fein das Tabellengitter gewählt wird. Daher ist es nötig, Wege zu finden, den Zeitaufwand für die Tabellengenerierung zu verringern.

Die parallele Berechnung der benötigten ILDM-Punkte bietet dabei einen Ausweg. Dabei ist zu beachten, daß zur Berechnung eines ILDM-Punktes ein Schätzwert benötigt wird, dessen Koordinaten nur gering von denen des gesuchten Punktes abweichen. Ansonsten ist die Berechnung der einzelnen ILDM-Punkte von einander unabhängig, daher ist das Problem prinzipiell parallelisierbar.

### 7.2 Abschätzung der Möglichkeit für die Parallelisierung der Tabellengenerierung

Die In-situ-Erzeugung einer ILDM-Tabelle hat in vielen Fällen große Vorteile. Es werden nur die ILDM-Punkte berechnet, die vom CFD-Programm benötigt werden. Da in vielen Rechnungen nur ein kleines Teilgebiet der ILDM benötigt wird, führt dies zu einer enormen Rechenzeit- und Speicherplatzersparnis. Wegen der Kopplung der neu zu berechnenden ILDM-Punkte mit dem CFD-Programm ist es wenig erfolgversprechend, das ILDM-Programm unabhängig vom CFD-Programm zu parallelisieren. Bestenfalls können alle Punkte einer Tabellenzelle gleichzeitig berechnet werden. Meist werden aber schon ein Teil der benötigten Punkte in der Tabelle vorhanden sein, oder aber die vorhandenen Schätzwerte

sind von den benötigten ILDM-Punkten so weit entfernt, daß eine iterative Annäherung an die gesuchten Punkte notwendig ist. Diese Annäherung ist aber kaum sinnvoll parallelisierbar. Deshalb wurde auf die Parallelisierung der In-Situ-Tabellierung verzichtet.

Oft wird aber auch die gesamte niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit in Simulationen benötigt, z. B. tritt dies häufig bei Verwendung von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen auf. Dann ist es sinnvoll, im Vorfeld eine komplette ILDM-Tabelle zu erstellen und diese für die Simulationen zu verwenden. Die Parallelisierung der ILDM-Software wurde für diesen oft auftretenden Fall durchgeführt.

Ein häufiges Problem bei der Parallelisierung ist, daß sehr große Datenmengen zwischen den einzelnen Prozessoren ausgetauscht werden müssen. Dies kann dazu führen, daß der Datentransfer über das Netzwerk schon bei einer kleinen Anzahl von Prozessoren der zeitbestimmende Faktor wird, so daß eine Parallelisierung wenig sinnvoll ist.

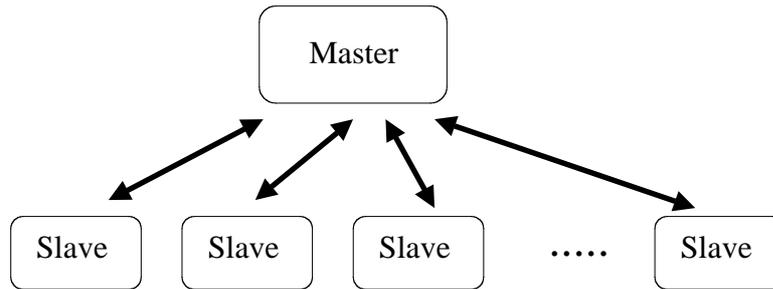
In diesem Fall ist die zu übertragende Datenmenge zwischen den einzelnen CPUs klein. Pro zu berechnenden ILDM-Punkt müssen ein Schätzwert und die ILDM-Koordinaten an die CPUs gesendet werden. Nach der Berechnung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit sendet die CPU den neu berechneten Punkt zusammen mit einigen physikalischen Eigenschaften (mittlere molare Masse, Reaktionsgeschwindigkeiten der Fortschrittsvariablen, ...) zurück. Pro Datentransfer werden dabei weniger als 1 KByte an Daten über das Netz geschickt, während die Berechnung eines neuen Punktes meist mehr als eine Sekunde dauert. Daher stellt der Datentransfer bei der Parallelisierung der Tabellengenerierung kein großes Problem dar.

## 7.3 Wahl der Methode

Eine Möglichkeit zur Parallelisierung besteht darin, den Tabellierungsbereich in mehrere Bereiche zu zerlegen, die von den einzelnen CPUs unabhängig voneinander berechnet werden.

Haben alle CPUs ihren Tabellenbereich berechnet, so werden diese Tabellen zu einer einzigen Tabelle zusammengefügt. In einigen Spezialfällen ist dieser Ansatz sinnvoll, z. B. bei ILDM-Tabellen mit variablen Druck (siehe Abschnitt 5.4.2). Der Vorteil dieser Methode ist, daß der bestehende Algorithmus zur Tabellenerzeugung kaum verändert werden muß; lediglich ein Algorithmus zum Vereinigen zweier bestehender Tabellen ist zu entwickeln. Außerdem ist kein Datentransfer während der Tabellenerzeugung nötig.

Dieser Ansatz hat allerdings einige gravierende Mängel. Zum einen muß für jeden dieser Teilbereiche ein Startpunkt für die Berechnung der ILDM-Tabelle gefunden werden, was bei einer größeren Anzahl von Teilbereichen aufwändig und unter Umständen auch schwierig sein kann, denn dieser Startpunkt muß ein ILDM-Punkt sein oder zumindest nur sehr gering von einem Punkt auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit abweichen.



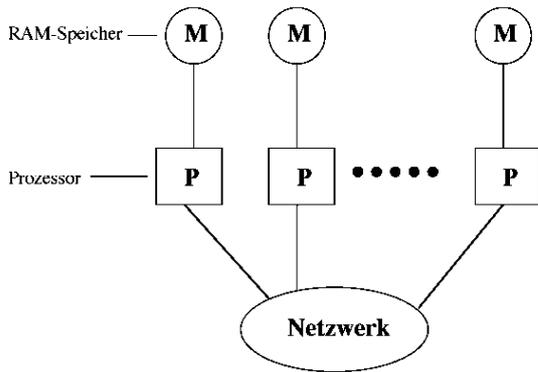
*Abb. 7.1 Prinzip des Master-Slave-Ansatzes. Ein Master-Prozessor steuert mehrere Slave-Prozessoren, die die zeitaufwendigen numerischen Berechnungen durchführen. Die Kommunikation zwischen Master- und Slave-Prozessoren erfolgt hier mit Hilfe der MPI-Software über des Netzwerk.*

Außerdem wird für die Berechnung eines ILDM-Punktes immer ein Schätzwert, dessen Koordinaten nur gering von denen des gesuchten Punktes abweichen, benötigt. Je nach Bereich der Mannigfaltigkeit kann es vorkommen, daß die Schrittweite der Tabelle in einer Koordinatenrichtung selbst bei adaptiver Verfeinerung zu groß ist. Daher ist es in einem solchen Bereich sinnvoll, eine Annäherung aus einer anderen Koordinatenrichtung vorzunehmen. In den Grenzen der Teilbereiche der Tabelle ist dies aber nur bedingt möglich, da die Daten der anderen Tabellenbereiche der CPU während der Tabellengenerierung nicht zur Verfügung stehen. Besonders bei sehr steifen chemischen Systemen, wie zum Beispiel einem Zweikomponenten-Brennstoff bestehend aus 80 % Dekan und 20 % einer aromatischen Verbindung, kann dies dazu führen, daß keine optimalen Ergebnisse produziert werden. Deshalb konnte dieser einfache Ansatz zur Parallelisierung der Tabellenerzeugung nicht gewählt werden. Es wird deshalb der Ansatz gewählt, eine einzige Tabelle parallel auf mehreren Rechner zu erzeugen.

Bei der Parallelisierung des ILDM-Programms wurde das Master-Slave“-Konzept verwendet. Der Master-Prozessor verwaltet die ILDM-Tabelle und bestimmt, welche ILDM-Punkte mit welchen Schätzwerten zu berechnen sind. Die zu berechnenden Punkte werden in einer „To-Do-Liste“ gespeichert. Die übrigen Prozessoren erhalten vom Master die zu berechnenden ILDM-Punkte zusammen mit dem Schätzwert. Dabei ist darauf zu achten, daß nicht derselbe ILDM-Punkt auf verschiedenen Prozessoren gleichzeitig berechnet wird. Diese Slave-Prozessoren führen die rechenintensive ILDM-Punkt-Berechnung durch und senden das Ergebnis an den Master-Prozessor zurück. Der trägt die Ergebnisse in die ILDM-Tabelle ein und sendet neue Daten an den warteten Slave-Prozessor. Dies wird solange fortgesetzt, bis die gesamte ILDM-Tabelle erstellt wurde.

Aufgrund der vorhandenen Computer wurde von einem System mit „distributed memory“ ausgegangen, d.h. jeder Computer hat nur Zugriff auf seinen eigenen Arbeits-Speicher. Der Austausch der Daten erfolgt über das Netzwerk. Im Gegensatz dazu hat bei einem System mit

a)



b)

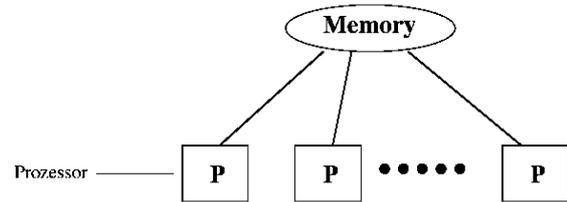


Abb. 7.2 Schematische Darstellung des Distributed-Memory- und des „Shared -Memory Konzepts

„shared memory“ jeder Computer Zugriff auf einen gemeinsamen RAM-Speicher. Der Distributed-Memory-Ansatz ist allgemeiner, da er auch bei einem System mit shared-memory verwendet werden kann, ist in der Regel etwas langsamer, da Daten über das Netz übertragen werden müssen. Wie oben diskutiert, ist die bei der Tabellengenerierung zu übertragende Datenmenge gering; daher ist hier die Datenübertragung über das Netzwerk kein geschwindigkeitsbestimmende Faktor.

## 7.4 Kommunikation zwischen den Prozessoren

Beim hier betrachteten Problem findet nur eine Kommunikation zwischen der Master-CPU und den einzelnen Slave-Prozessoren statt. Die einzelnen Slave-Prozessoren tauschen keine Daten direkt miteinander aus. Es handelt sich also bei den einzelnen Kommunikationsvorgängen um eine Punkt-zu-Punkt-Kommunikation; das heißt, an jedem Kommunikationsprozeß sind jeweils nur zwei Partner beteiligt. Realisiert wurde der Datenaustausch über das Netzwerk mit Hilfe der Standardsoftware MPI (Message Passing Interface). MPI stellt verschiedene Routinen zum Austausch von Daten zur Verfügung. Bei der Auswahl ist zu beachten, daß sichergestellt wird, daß das Programm erst dann weiter arbeitet, wenn die benötigten Daten schon komplett übertragen wurden. Andererseits ist darauf zu achten, daß der Programmablauf nur dann bei einer Kommunikation unterbrochen wird, wenn es notwendig ist. Speziell beim Master-Prozessor ist wichtig, daß das Programm weiter abgearbeitet wird, während auf die Rücksendung der neu berechneten ILDM-Punkte von den Slave-CPU's gewartet wird. In diesem Fall muß eine „non-blocking communication“ gewählt werden. Hierbei wird

der Programmablauf bei einer Kommunikation nicht unterbrochen. Werden die Daten aus dem Kommunikationsprozeß benötigt, muß erst getestet werden, ob der Datenaustausch abgeschlossen ist. Bei der „blocking communication“ wird der Programmablauf solange gestoppt, bis der Datentransfer beendet ist. Nach einer solchen Kommunikation ist also sichergestellt, daß dem Empfänger alle zugesandten Daten zur Verfügung stehen.

Bei beiden Fällen wurde die synchronisierte Version der Kommunikation gewählt. Bei der „synchronous communication“ sendet der Empfänger der Nachricht eine Bestätigung, daß er die Nachricht erhalten hat. Der Kommunikationsprozeß ist erst dann abgeschlossen, wenn der Sender der Nachricht diese Bestätigung erhalten hat [19]. Diese synchronisierte Datenübertragung kann zwar etwas langsamer als die nicht synchronisierte Version sein, sie ist allerdings sicherer, da das Netzwerk nie mit unabgeschlossenen Kommunikationsprozessen überladen werden kann. Außerdem wird durch diese Methode der Programmablauf vorhersagbarer, da bei ihm Sender und Empfänger synchronisiert werden. Zusätzlich wird die Fehlersuche deutlich vereinfacht, weil es niemals vorkommen kann, daß Daten nicht übermittelt und „unsichtbar“ im Netzwerk liegen [19].

## 7.5 Algorithmus zum Erstellung einer ILDM-Tabelle

Im Folgenden soll kurz der Algorithmus skizziert werden, der bei der Erstellung von ILDM-Tabellen benutzt wird. Soll eine Tabelle neu erstellt werden, so muß der Benutzer zu Beginn der Rechnung einen ILDM-Punkt als Startpunkt vorgeben und den Bereich bestimmen, in dem ILDM-Punkte berechnet werden sollen. Soll eine bestehende Tabelle aufgefüllt werden, so findet das Programm selbstständig aus der bestehenden Tabelle einen geeigneten Startwert.

Das Programm prüft dann alle Nachbarpunkte des Startpunktes, ob sie schon in der Tabelle vorhanden sind und ob bei ihnen die Berechnung der ILDM erfolgreich war. Ist eine der beiden Bedingungen nicht erfüllt, so wird dieser Punkt neu berechnet. Als Schätzwert für die Numerik wird dabei der Startpunkt verwendet. War die Berechnung erfolgreich, so wird dieser neu berechnete Punkt als Schätzwert für alle seine Nachbarpunkte verwendet, die noch nicht (erfolgreich) berechnet wurden. Auf diese Weise wird der gesamte Bereich der Tabelle aufgefüllt, in dem die Berechnung von ILDM-Punkten möglich ist. Voraussetzung ist allerdings, daß dieser Bereich ein zusammenhängendes Gebiet ist. Dies ist allerdings bei praktischen Anwendungen fast immer gewährleistet. Anderenfalls müssen vom Benutzer weitere ILDM-Punkte als Startwerte eingegeben werden.

## 7.6 Vergleich der Effizienz bei verschiedener Prozessoranzahl

Im Folgenden soll untersucht werden, wie die Anzahl der Prozessoren mit der benötigten Rechenzeit zusammenhängt. Ein in der Informatik weit verbreitetes Maß für die Qualität eines parallelen Algorithmus ist die absolute Effizienz [20]

$$E_a = \frac{t_1}{t_p} \frac{1}{p} . \quad 7.1$$

Hierbei ist  $t_1$  die Ausführzeit für das schnellste bekannte sequentielle Programm,  $t_p$  ist die Ausführzeit für das parallelisierte Programm bei Verwendung von  $p$  Prozessoren.

Für die Erzeugung der ILDM-Tabellen wurde ein Cluster von verschiedenen CPUs verwendet (SGI R5000-R10000). Auf einem Teil der Prozessoren liefen allerdings noch andere Prozesse; daher ist die absolute Rechenzeit nicht exakt zu reproduzieren. Der Einfluß dieser Prozesse war aber bei allen Testrechnungen ähnlich und es lassen sich deshalb qualitative Aussagen über den Erfolg der Parallelisierung machen.

Ein vernünftiges Maß für den Erfolg der Parallelisierung ist das Verhältnis der für die ILDM-Numerik verwendeten Zeit zu der gesamten verbrauchten Zeit. Je größer dieses Verhältnis ist, desto weniger Zeit wurde für die Datenkommunikation verwendet und desto seltener mußten die Slave-Prozessoren untätig warten, weil kein Punkt mehr in der „To-Do-Liste“ vorhanden war, der nicht aktuell berechnet wird.

Als Testbeispiel wurde die oben beschriebene zweidimensionale Tabelle verwendet. Bei allen Überlegungen ist zu beachten, daß mit zunehmender Tabellendimension  $n$  immer mehr Slave-Prozessoren sinnvoll eingesetzt werden können. Jeder neu berechnete ILDM-Punkt kann maximal als Schätzwert für  $2^n$  neue Punktberechnungen dienen. Davon wird allerdings ein Teil schon berechnet worden sein. Das Verhalten des Wachstums einer neuen ILDM-Tabelle ist ähnlich dem einer Kugeloberfläche im  $n$ -dimensionalen Raum. Des weiteren hat der angegebene Tabellierungsbereich und die Anzahl der schlechten Punkte einen deutlichen Einfluß auf die Performance. Daher können die angegebenen Ergebnisse nur als Richtwerte dienen. Im Einzelfall sind auch deutliche Abweichungen möglich.

## 7.7 Ergebnis bei Generierung einer zweidimensionalen ILDM-Tabelle

Als Testbeispiel wurde eine ILDM-Tabelle mit einer Fortschrittsvariable und der Temperatur als Tabellierungsachsen gewählt. Im Folgenden sind die Ergebnisse für die benötigte Rechenzeit aufgeführt. Als Performance für die Slave-Prozessoren wurde das Verhältnis gesamte Rechenzeit zu der für die Berechnung der ILDM-Punkte verwendeten Zeit bezeichnet.

Die Differenz ergibt sich im Wesentlichen aus Initialisierungsroutinen und dem Warten auf Daten, die vom Master-Prozessor gesendet werden.

a) Tabellenerzeugung mit dem sequentiellen Programm

Prozessornummer	0
Gesamte verbrauchte Zeit	12167,6
Für ILDM-Numerik verbrauchte Zeit	9972,0

b) Tabellenerzeugung unter Verwendung des parallelisierten Programms bei Verwendung von 3, 4 oder 6 Prozessoren

Prozessornummer	0	1	2
Gesamte verbrauchte Zeit	5608,0	5586,9	5584,5
Für ILDM-Numerik verbrauchte Zeit		5522,1	5498,8
Performance(%)		98,78	98,47

Prozessornummer	0	1	2	3
Gesamte verbrauchte Zeit	3865,5	3842,1	3843,5	3841,1
Für ILDM-Numerik verbrauchte Zeit		3779,5	3778,6	3774,5
Performance (%)		98,26	98,1	98,26

Prozessornummer	0	1	2	3	4	5
Gesamte verbrauchte Zeit	2481,0	2463,7	2460,6	2460,6	2453,9	2458,4
Für ILDM-Numerik verbrauchte Zeit		2230,7	2208,2	2217,0	2294,0	2238,1
Performance(%)		90,05	89,74	90,02	93,48	91,04

c) Untersuchung der Effizienz

Prozessoranzahl	3	4	6
Absolute Effizienz	0,723	0,787	0,817

## 7.8 Diskussion der Ergebnisse

Beim Betrachten der absoluten Beschleunigung zeigt sich, daß bei Verwendung von 6 Prozessoren die insgesamt benötigte Zeit auf ca. 20% gesunken ist. Die Untersuchung der Effizienz zeigt, daß sie mit zunehmender Prozessoranzahl ansteigt. Der Grund dafür ist, daß der Master-Prozessor mit der Verwaltung der Tabelle und der „To-Do-Liste“ bei einer zu geringen Anzahl von Prozessoren nicht ausgelastet ist. Er wartet einen großen Teil der Zeit untätig auf die Daten, die von den Slave-Prozessoren zurückgesendet werden. Beim Betrachten der Performance der Slave-CPU's sieht man aber auch, daß sie beim Einsatz von 6 CPU's deutlich gesunken ist. Ein Grund dafür ist zum einen, daß am Anfang und am Ende der Tabellengenerierung nicht mehr für alle CPU's noch zu berechnende Punkte in der „To-Do-Liste“ stehen. Zum anderen schlägt die Rechenzeit, die für die Initialisierung benötigt wird, mit zunehmender Prozessoranzahl stärker zu Buche, da dieser Initialisierungsprozeß mit zunehmender Prozessoranzahl eher länger dauert. Beide Beschränkungen dürften aber bei der Erzeugung von höherdimensionalen Tabellen einen deutlich geringeren Einfluß haben, da dann die gesamte benötigte Rechenzeit um ein Vielfaches höher ist. In diesem Fall werden diese Effekte prozentual nur geringfügig ins Gewicht fallen. Es wird aber die Master-CPU ab einer bestimmten Anzahl von eingesetzten Prozessoren der geschwindigkeitsbestimmende Faktor, zumal mit zunehmender Größe der generierten Tabelle auch der Aufwand für das Verwalten der ILDM-Tabelle und der „To-Do-Liste“ immer größer wird.

# Kapitel 8

## Verwendung von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten mit variabler Dimension

### 8.1 Motivation

In vielen Verbrennungssystemen liefert eine Simulation mit ein- oder zweidimensionalen Mannigfaltigkeiten zufriedenstellende Ergebnisse. In einigen Systemen werden aber höherdimensionale Mannigfaltigkeiten benötigt, um die Spezieszusammensetzung richtig vorherzusagen. Mit zunehmender Anzahl von Fortschrittsvariablen werden immer mehr chemische Prozesse berücksichtigt, und die Geschwindigkeit der Prozesse, die nach der ILDM-Annahme schon auf die Mannigfaltigkeit relaxiert sind, nimmt zu. Daher können bei Verwendung von mehr Fortschrittsvariablen auch Systeme mit schnelleren physikalischen Prozessen beschrieben werden, da mit zunehmender Dimension der ILDM die Annahme besser erfüllt ist, daß die schnellen chemischen Prozesse den physikalischen Transport senkrecht zur Mannigfaltigkeit kompensieren. Tests in laminaren Flammen (Kap. 10) zeigen, daß bei Verwendung einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit die Radikalkonzentrationen von z.B. O-Radikalen zufriedenstellend vorhergesagt werden können, während eine zweidimensionale Mannigfaltigkeit die O-Konzentration deutlich überschätzt. Daher wurde in den folgenden Beispielen der Spezialfall einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit bei dem Druck von 1 bar untersucht.

Zudem liegen die Start- und die Randbedingungen oft nicht auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit. Auch aus diesen Gründen ist die Verwendung einer höheren Anzahl von Fortschrittsvariablen in einigen Verbrennungssystemen nötig.

In Abbildung 8.1 ist ein stöchiometrisches Dekan-Luft-Gemisch in einem homogenen Reaktor dargestellt. Der Startwert der Simulation liegt in der Nähe der dreidimensionalen Mannigfaltigkeit. Bei der Simulation mit der ILDM-Methode wird der Startwert auf die niedrigdimensionale Mannigfaltigkeit projiziert. Bei Verwendung einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit ist die Abweichung von dem detaillierten System gering, werden dagegen nur zwei Fortschrittsvariablen verwendet, so ergeben sich deutliche Abweichungen in einigen Speziesmassenbrüchen, z. B. O, O<sub>2</sub>, und der Temperatur. Nach ca. 20 µs ist das System auf die zweidimensionale Mannigfaltigkeit relaxiert, und die Beschreibung mit einer zweidimensionalen Mannigfaltigkeit ist möglich. Es zeigt sich aber, daß die Beschreibung von Zuständen, die bereits auf einer ein- oder zweidimensionalen Mannigfaltigkeit liegen, mit drei oder mehr Fortschrittsvariablen große numerische Schwierigkeiten machen kann. Von der Theorie ist zwar jeder Punkt auf einer (n-1)-dimensionalen Mannigfaltigkeit auch ein Punkt auf der n-di-

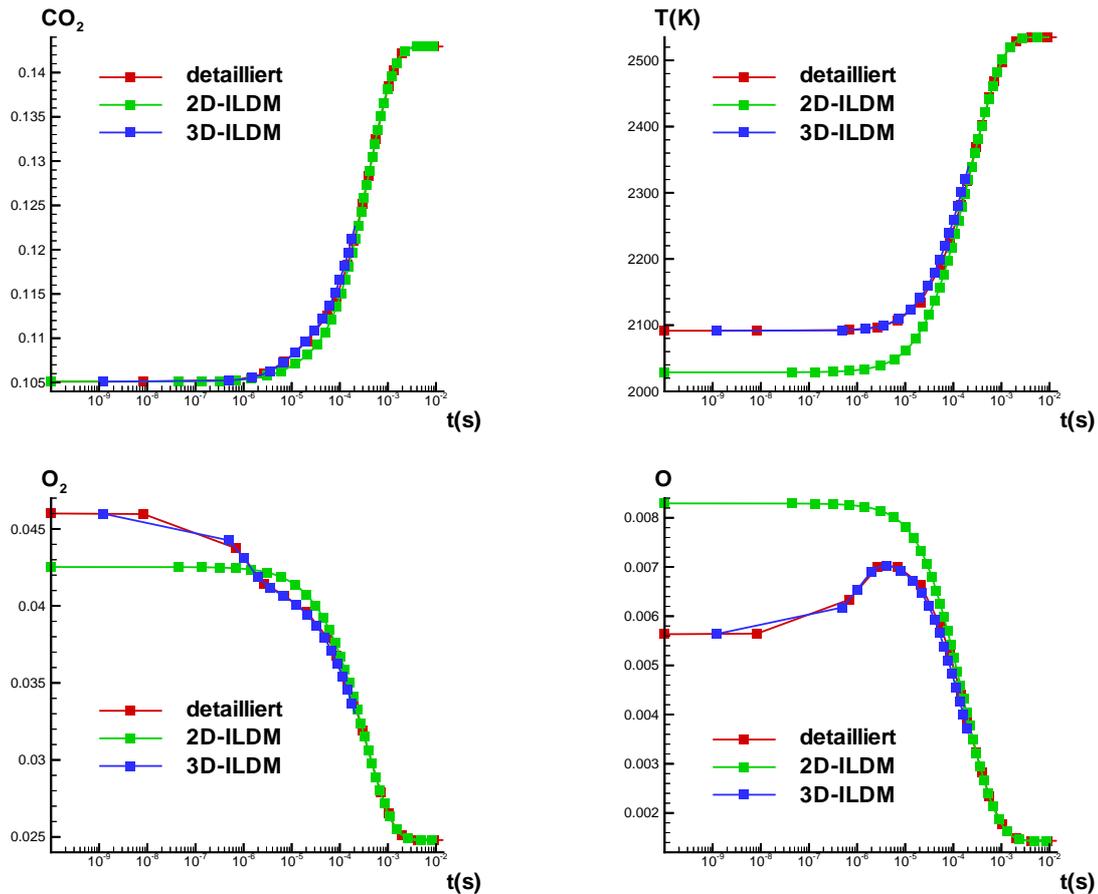


Abbildung 8.1: Stöchiometrisches Dekan-Luft-Gemisch in einem homogenen abgeschlossenen Reaktor, Simulation mit einem detaillierten Mechanismus und der ILDM-Methode (zwei, bzw. drei Fortschrittsvariablen)

mensionalen Mannigfaltigkeit, doch wird im Allgemeinen, selbst wenn die ersten  $(n-1)$  Fortschrittsvariablen auf dem Tabellengitter liegen, die Spezieskonzentration der Spezies, die die  $n$ -te Fortschrittsvariable repräsentiert, nicht mehr auf dem Gitter liegen. Daher ist bei der Verwendung von Speziesmassenbrüchen zur Parametrisierung der Mannigfaltigkeit von der Theorie nicht sichergestellt, daß immer alle für die Interpolation benötigten Koordinaten Punkte mit diesen Parametern auf der  $n$ -dimensionalen Mannigfaltigkeit existieren. Bei Verwendung von drei Fortschrittsvariablen ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{O}_2$ ) und bei 1 bar zeigt sich für Alkan-Luft-Gemische, daß selbst bei Verwendung eines relativ feinen Koordinatengitters in vielen Fällen nicht alle für die Interpolation benötigten Punkte gefunden werden können. Eine weitere Verfeinerung des Gitters ist selbst bei Verwendung einer adaptiven Schrittweite nicht praktikabel. Im in Abb. 8.1 dargestellten Fall konnten bei  $t \approx 0,5$  ms bei der Simulation mit drei Fortschrittsvariablen nicht mehr alle benötigten ILDM-Punkte gefunden werden, und die Simulation wurde gestoppt.

Zudem ist zu berücksichtigen, daß bei Verwendung in einem CFD-Programm während der numerischen Berechnung normalerweise auch Parametersätze benötigt werden, die nicht de-

nen des Endergebnisses entsprechen. Gibt es nun für eine gegebene  $\text{CO}_2$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration nur sehr wenige  $\text{O}_2$ -Werte, denen ein Punkt auf der dreidimensionalen ILDM entspricht, so ist es relativ wahrscheinlich, daß im Rahmen der numerischen Lösung auch ILDM-Punkte für Parametersätze benötigt werden, für die die ILDM-Methode keine Daten liefern kann. Dies kann das numerische Verfahren instabil machen. Als Konsequenz muß deshalb das numerische Verfahren entsprechend gewählt werden, daß solche Probleme möglichst vermieden werden. Zum anderen ist es sinnvoll, nur da eine Mannigfaltigkeit mit höherer Dimension zu benutzen, wo es notwendig ist, und in der Nähe des Gleichgewichts nur weniger Fortschrittsvariablen zu verwenden. Dies ist einfach dadurch zu erreichen, daß man neben der dreidimensionalen ILDM-Tabelle auch ILDM-Tabellen für zwei und eine Fortschrittsvariable erzeugt und dann immer die Daten aus der entsprechenden Tabelle ausliest. Die Erzeugung der ILDM-Tabelle mit einer geringeren Anzahl von Fortschrittsvariablen ist dabei mit einem verhältnismäßig geringen Mehraufwand verbunden, da die Tabellengröße mit jeder zusätzlichen Dimension um ein Vielfaches ansteigt (Kapitel 5).

## 8.2 Implementation der ILDM-Methode mit einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen in einem CFD-Programm

Der Nachteil dieser Methode ist, daß dann an sich auch im CFD-Programm mit einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen zu rechnen wäre. Um die Verwendung des ILDM-Programms einfach zu halten, sollte aber im CFD-Programm immer mit einer konstanten Anzahl von Fortschrittsvariablen gerechnet werden. So sollten immer Erhaltungsgleichungen für die drei Fortschrittsvariablen gelöst werden, auch wenn nur eine eindimensionale Mannigfaltigkeit zur Beschreibung der chemischen Prozesse verwendet wird.

Im Folgenden wird ein möglicher Ansatz zur Lösung dieses Problems diskutiert. Eine weitere mögliche Implementierung stellt die Verwendung von „Key-Species“ dar, in der für alle wichtigen Spezies Erhaltungsgleichungen im CFD-Programm gelöst werden [14].

Diese Methode hat allerdings den Nachteil, daß meist für über zehn Speziesmassenbrüche Erhaltungsgleichungen zu lösen sind, was mit einem entsprechenden Mehraufwand verbunden ist. Diese Implementation konnte zwar erfolgreich zur Beschreibung laminarer Flammen verwendet werden [22], hat aber den Nachteil, daß sie dem eigentlichen Ziel, nämlich der Beschreibung des chemischen Systems mit sehr wenigen Variablen, widerspricht.

Daher soll hier eine ähnliche Methode vorgestellt werden, bei der weiterhin nur für die Fortschrittsvariablen (maximal drei) Erhaltungsgleichungen zu lösen sind.

Zur Beschreibung der Vorgehensweise soll exemplarisch der häufig auftretende Fall einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit verwendet werden. Analog kann mit einer zweidimensionalen Mannigfaltigkeit verfahren werden, die in der Nähe des Gleichgewichtspunktes durch eine eindimensionale Mannigfaltigkeit ersetzt wird.

Es sei vorausgesetzt, daß die ersten beiden Fortschrittsvariablen der dreidimensionalen ILDM-Tabelle mit denen der zweidimensionalen Tabelle übereinstimmen.

Als erstes soll immer versucht werden, die ILDM-Gleichung mit drei Fortschrittsvariablen zu lösen. Ist dies nicht möglich, soll geprüft werden, ob der Punkt auf der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit bzw. in deren Nähe liegt. Wenn dies der Fall ist, werden die Daten der zweidimensionalen ILDM verwendet. Die Spezieszusammensetzung und physikalischen Größen wie Enthalpie, Dichte etc. können dabei ohne Änderung aus der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit verwendet werden. Diese Näherung ist sinnvoll, sofern die Koordinate der dritten Fortschrittsvariable nur gering von dem entsprechenden Speziesmassenbruch auf der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit abweicht.

Auch die Reaktionsgeschwindigkeit der ersten und zweiten Fortschrittsvariable können aus der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit verwendet werden, sofern die Fortschrittsvariablen der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit mit denen der ersten beiden Fortschrittsvariablen der dreidimensionalen Mannigfaltigkeit übereinstimmen. Die Bestimmung der Reaktionsgeschwindigkeit der dritten Fortschrittsvariable ist dagegen problematischer. Stimmt der Wert der dritten Fortschrittsvariable mit dem entsprechenden Speziesmassenbruch auf der zweidimensionalen ILDM exakt überein, so müssen auch die Reaktionsgeschwindigkeiten der betreffenden Spezies übereinstimmen. Es findet lediglich eine Reaktion  $\dot{w}_3^{\text{para}}$  entlang der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit statt. Weicht dagegen die Konzentration der dritten Fortschrittsvariable etwas von dem Wert auf der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit ab, so kommt ein weiterer Term  $\dot{w}_3^{\text{relax}}$  hinzu, der die Relaxation auf die zweidimensionale Mannigfaltigkeit beschreibt. Dieser Term kann nicht aus den Daten der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit berechnet werden, sondern er muß modelliert werden:

$$\dot{w}_3 = \dot{w}_3^{\text{para}} + \dot{w}_3^{\text{relax}} . \quad 8.1$$

Als Ansatzfunktion für den Relaxationsterm  $\dot{w}_3^{\text{relax}}$  wurde

$$\dot{w}_3^{\text{relax}} = \frac{1}{k} (w_3^{\text{ildm}} - w_3) \quad 8.2$$

gewählt.  $w_3^{\text{ildm}}$  bezeichnet dabei den Massenbruch der dritten Fortschrittsvariable auf der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit,  $w_3$  den aktuellen Wert der dritten Fortschrittsvariable.  $k$  ist eine Konstante, die die Geschwindigkeit der Relaxation beschreibt. Physikalisch sollte die Zeitskala der Relaxation zwischen der langsamsten schnellen und der schnellsten Zeitskala auf der zweidimensionalen ILDM liegen, sofern der Abstand von der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit klein ist. Im Folgenden soll untersucht werden, welchen Einfluß die Wahl des Faktors  $k$  auf die Simulationsergebnisse hat. Dazu wurde ein homogenes System untersucht. Der Startpunkt der detaillierten Rechnung liegt auf der dreidimensionalen ILDM. Für die Simulationen mit der ILDM-Methode unter Verwendung von zwei Fortschrittsvariablen

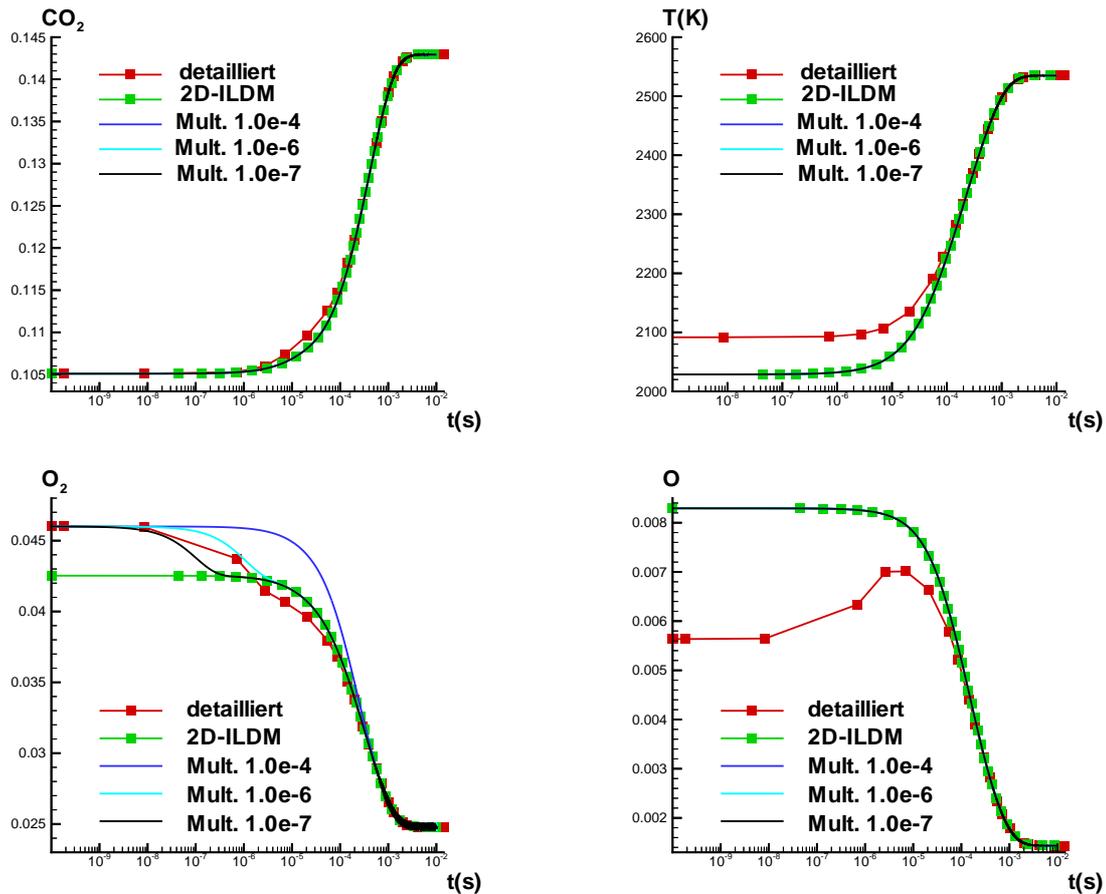


Abbildung 8.2: Homogenes stöchiometrisches Dekan - Luft Gemisch bei  $p=1$  bar, Enthalpie entspricht  $T_{ox}=1000$  K. Es wurde der Einfluß des Relaxationsfaktors  $k$  auf die Simulationsergebnisse untersucht.

wurde eine Projektion auf die Mannigfaltigkeit vorgenommen. Es wurden isobare, adiabatische Bedingungen vorausgesetzt. Als Brennstoff wurde Dekan verwendet. In Abbildung 8.2 wurde zum Vergleich bei den Simulationen 3-5 der gesamte Verlauf mit dem zu untersuchenden Modell berechnet. Wie zu erwarten, ist die Wahl des Faktors  $k$  nur für den zeitlichen Verlauf des Massenbruchs der 3. Fortschrittsvariable ( $O_2$ ) von Bedeutung. Der Verlauf der ersten beiden Fortschrittsvariablen entspricht exakt dem der zweidimensionalen ILDM. Dies gilt auch für den Verlauf der übrigen Speziesmassenbrüche und den der Temperatur. Es ist deutlich zu sehen, daß für  $k > 10^{-6}$  es relativ lange dauert, bis die Relaxation auf die zweidimensionale Mannigfaltigkeit abgeschlossen ist. In der Nähe des Gleichgewichts ist der Verlauf aber unabhängig von der Wahl des Faktors  $k$ . Nach ca. 0,1 ms ist das System auf die zweidimensionale ILDM relaxiert, und es sind keine Abweichungen mehr von der Simulation mit detaillierter Chemie zu sehen.

Im Bereich, in dem die  $O_2$ -Konzentration von der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit abweicht, entsprechen die Spezieskonzentrationen und die physikalischen Größen nicht den Werten der dritten Variable, da diese Werte nur von den ersten zwei Fortschrittsvariablen abhängig sind. In diesem Bereich kommt es zu einer gewissen Inkonsistenz, da die Spezieszu-

sammensetzung nicht mehr exakt der vorgegebenen Mischung entspricht. Diese Implementation ist nur sinnvoll, wenn die Unterschiede zwischen der  $O_2$ -Konzentration in der Simulation und in der zweidimensionalen ILDM nicht zu groß sind. Es ist also sinnvoll, den Faktor möglichst groß zu wählen, um den Bereich mit diesen Inkonsistenzen möglichst klein zu halten. Dies wird besonders dann wichtig, wenn noch physikalische Terme wie Diffusion auftreten, die die  $O_2$ -Konzentration von der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit wegbewegen. Wählt man  $k$  zu klein, findet keine Relaxation mehr auf die zweidimensionale Mannigfaltigkeit statt, und dieses Modell kann nicht mehr angewendet werden. Wählt man  $k$  allerdings sehr groß, so wird das System sehr steif, was zu numerischen Problemen und einem erhöhten Rechenzeitaufwand führt. Betrachtet man die für die Simulation benötigte Zeit in Abhängigkeit vom Faktor  $k$  so erhält man:

Faktor $k$	CPU - Zeit
$10^{-4}$	56,041
$10^{-5}$	56,313
$10^{-6}$	60,797
$10^{-7}$	95,527
$10^{-9}$	2136,699

*Benötigt CPU-Zeit für die homogene Rechnung in Abhängigkeit vom verwendeten  $k$ . Zur Lösung des Gleichungssystem wurde ein Eulerverfahren mit variabler Schrittweite verwendet.*

Für  $k < 10^{-7}$  ist mit einem drastischen Anstieg der benötigten Rechenzeit zu rechnen, da in diesem Fall die Reaktionsgeschwindigkeit des Relaxationsterms schon bei kleinen Abweichungen größer wird als die Reaktionsgeschwindigkeiten der Reaktion entlang der Mannigfaltigkeit wird.

Die Ergebnisse zeigen, daß im Bereich, in dem die Relaxation auf die dreidimensionale ILDM abgeschlossen ist, unabhängig vom exakten Wert von  $k$  eine Beschreibung mit dieser Implementation möglich ist. Gerade dieser Bereich ist aber wichtig, da hier die Beschreibung mit einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit problematisch ist.

In Abbildung 8.3 wird untersucht, in wie weit die Simulation mit einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen tatsächlich in der Lage ist, das chemische System in allen Bereichen korrekt zu beschreiben. Bis zum Zeitpunkt  $t \approx 0.1$  ms wurde eine dreidimensionale ILDM verwendet, die in der Lage ist, die Startbedingungen korrekt zu beschreiben. Danach ist die Relaxation auf die zweidimensionale ILDM bereits abgeschlossen, und die Simulation mit einer zweidimensionalen Mannigfaltigkeit und dem modulierten Term für die dritte Fortschrittsvariable liefern korrekte Ergebnisse.

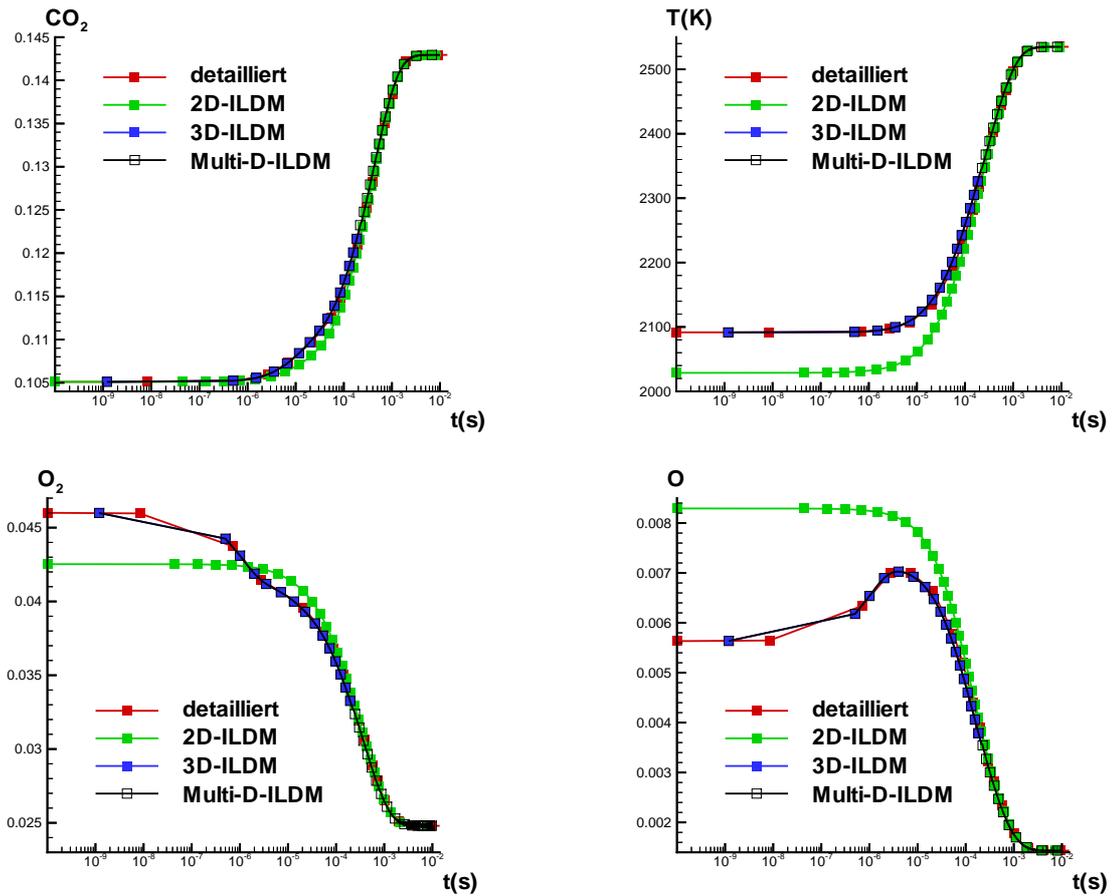


Abbildung 8.3: Simulation mit einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen, mit detaillierter Chemie und Simulationen mit einer konstanten Anzahl von Fortschrittsvariablen.

Neben diesen Tests in homogenen Reaktionssystemen wurde die Verwendung einer variablen Anzahl von Fortschrittsvariablen auch bei der Simulation in laminaren Flammen erfolgreich eingesetzt (siehe Kapitel 10). Die hier vorgestellte Methode ist also in der Lage, chemische Reaktionssysteme korrekt zu beschreiben und bietet die Möglichkeit einer einfachen Implementation einer ILDM mit einer variablen Dimension in ein CFD-Programm.

# Kapitel 9

## Simulation von homogenen Systemen bei Verwendung der ILDM-Methode

### 9.1 Einleitung

Abgeschlossene räumlich homogene Systeme sind besonders geeignet, die Implementation der ILDM-Methode zu testen. In ihnen ändert sich der Zustand des Systems nur durch chemische Reaktionen, da keine physikalischen Prozesse auftreten. Bei Gültigkeit der ILDM-Annahme sollte das chemische System schnell auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxieren, und danach sollte nur noch eine Bewegung entlang der Mannigfaltigkeit erfolgen. Dies ist gewährleistet, wenn die Realteile der Eigenwerte der Relaxationsprozesse alle negativ sind. Daher sollten bei einer korrekten Implementation des reduzierten Mechanismus die Simulationsergebnisse bei Verwendung des detaillierten Reaktionsmechanismus und bei Verwendung des reduzierten Mechanismus übereinstimmen.

Da die homogenen Systeme sehr einfach und übersichtlich sind, können an ihnen besonders gut einzelne Effekte wie der Einfluß der Tabellierungsgenauigkeit auf das Simulationsergebnis oder der Anzahl der verwendeten Reaktionsfortschrittsvariablen auf die Geschwindigkeit der Relaxation untersucht werden.

Im folgenden Kapitel soll daher das verwendete Programm zur Simulation homogener Systeme kurz vorgestellt werden und einige Eigenschaften der mit der ILDM-Methode reduzierten Mechanismen aufgezeigt werden.

### 9.2 Numerische Lösung der Erhaltungsgleichungen

#### 9.3.1 Wahl des Algorithmus zur Lösung der Erhaltungsgleichungen bei der Simulation mit detaillierter und reduzierter Chemie

In einem homogenen System lauten die Erhaltungsgleichungen

$$\dot{\vec{x}} = \vec{S}(\vec{x}), \quad \vec{x} : \text{Zustandsvektor.} \quad 9.1$$

In den meisten Beispielen wurde von adiabatischen und isobaren Bedingungen ausgegangen. Daher ist es sinnvoll, die Enthalpie statt der Temperatur und den Druck als Koordinaten des Zustandsvektors zu verwenden. In diesem Fall müssen nur Erhaltungsgleichungen für die Speziesmassenbrüche gelöst werden.

Ein Merkmal chemischen Verbrennungssysteme ist die große Steifheit des Gleichungssystems 9.1. Einige Reaktionen laufen auf Zeitskalen im Nanosekundenbereich ab, während andere, wie z. B. die  $\text{NO}_x$ -Bildung, Zeitskalen in der Größenordnung von Sekunden benötigen. Daher muß zur numerischen Lösung ein Verfahren angewendet werden, das solche steifen Systeme beschreiben kann. Zur Simulation des homogenen Systems mit einem detaillierten Reaktionsmechanismus wurde der semi-implizite Lösungsalgorithmus LIMEX verwendet.

Prinzipiell ist auch bei Verwendung des reduzierten Mechanismus die Lösung des Gleichungssystems mit LIMEX möglich. Allerdings ist dies mit einigen Nachteilen verbunden. Bei Reduktion des detaillierten chemischen Reaktionsmechanismus mit der ILDM-Methode wird angenommen, daß alle schnellen Zeitskalen abgeklungen sind und sich der Zustand aufgrund der langsamen Reaktionen entlang der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit ändert.

Durch die Reduktion des Mechanismus werden also die schnellen Zeitskalen aus dem Gleichungssystem eliminiert. Daher kann auch ein explizites Verfahren zur Lösung der Erhaltungsgleichungen genutzt werden. Es wurde ein Eulerverfahren mit einem variablen Zeitschritt verwendet. Zwar werden aufgrund des relativ kleinen Zeitschritts sehr viel mehr Tabellenzugriffe benötigt, doch es werden nur ILDM-Punkte auf der homogenen Trajektorie benötigt, während bei einem semi-impliziten Verfahren auch andere ILDM-Punkte berechnet werden müssen. Bei In-situ-Generierung der ILDM-Tabelle müssen daher bei einem Euler-Verfahren sehr viel weniger ILDM-Punkte berechnet werden. Die Lösung der ILDM-Gleichungen ist aber um Größenordnungen rechenintensiver als der Tabellenzugriff. Dies führt insgesamt zu einer deutlichen Rechenzeiterparnis.

Besonders bei dreidimensionalen ILDM-Tabellen kann nicht mehr für jede Kombination von Fortschrittsvariablen eine Lösung der ILDM-Gleichungen gefunden werden. Bei einem impliziten Verfahren kann es vorkommen, daß auf Bereiche in der Tabelle zugegriffen wird, die nicht auf der homogenen Trajektorie liegen und für die keine Lösung der ILDM-Gleichung gefunden wurde. Setzt man in diesem Fall die Reaktionsgeschwindigkeit der Fortschrittvariablen einfach null, so führt dies zu numerischen Schwierigkeiten, und oft scheitert dann die Berechnung der Trajektorie. Die Verwendung des Euler-Verfahren ist nicht nur schneller sondern auch noch numerisch stabiler als der semi-implizite Lösungsalgorithmus von LIMEX. Ähnliche Überlegungen sind auch bei Verwendung eines anderen CFD-Programms anzustellen. Im Allgemeinen werden an ein numerisches Verfahren, das die Erhaltungsgleichungen für den reduzierten Mechanismus löst, andere Anforderungen gestellt. Ein solches kann die geringere Steifheit des chemischen Systems ausnutzen, es sollten aber nur „physikalisch sinnvolle“ Kombinationen der Fortschrittsvariablen verwendet werden.

Bei räumlich nicht-homogenen Systemen treten oft auch Bereiche auf, in denen keine Beschreibung mit der ILDM-Methode möglich ist, z. B. unverbrannte Mischungen. Je nachdem, welches Model hier genutzt wird, treten an der Grenze zum mit der ILDM-Methode modellierten Bereich mehr oder weniger starke Gradienten in der Dichte und den Reaktionsgeschwindigkeiten auf. Dies kann zu numerischen Schwierigkeiten führen.

Aufgrund der linearen Interpolation innerhalb der Tabelle ist immer die Stetigkeit der physikalischen und chemischen Größen gewährleistet, allerdings werden die Ableitungen dieser Größen nicht mehr stetig sein. Eine erfolgreiche Implementation der reduzierten Mechanismen in ein CFD-Programm ist nur möglich, wenn diese Besonderheiten berücksichtigt werden.

### 9.2.2 Eulerverfahren mit variablem Zeitschritt

Bei der Simulation des abgeschlossenen homogenen Systems mit reduzierter Chemie wurde ein Eulerverfahren mit einem variablen Zeitschritt verwendet. Wenn wie üblich adiabatische und isobare Bedingungen angenommen werden, müssen nur die Erhaltungsgleichungen für die Reaktionsfortschrittsvariablen gelöst werden.

Zur Bestimmung des Zeitschrittes wurde die schnellste relative Änderung  $\dot{w}_i^{\max}$  der Fortschrittsvariablen bestimmt. Der Zeitschritt  $\Delta t$  ergibt sich als  $\Delta t = 10^{-4} / \dot{w}_i^{\max}$ . Der Faktor  $10^{-4}$  hat sich als genügend klein erwiesen, um den Fehler bei diesem expliziten Verfahren hinreichend klein zu halten.

## 9.3 Vergleich der Simulationsergebnisse bei Verwendung von detaillierter und reduzierter Chemie

### 9.3.1 Simulation eines homogenen Systems auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit

Als erstes soll ein homogenes Dekan-System untersucht werden, dessen Anfangszustand bereits auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit liegt.

In Abbildung 9.1 ist zu erkennen, daß in diesem Fall die Simulation mit detaillierter und reduzierter Chemie nahezu exakt dieselben Ergebnisse liefern. Dies entspricht der Theorie, die besagt, daß ein auf die Mannigfaltigkeit relaxierter Zustand nicht mehr von dieser wegbe-

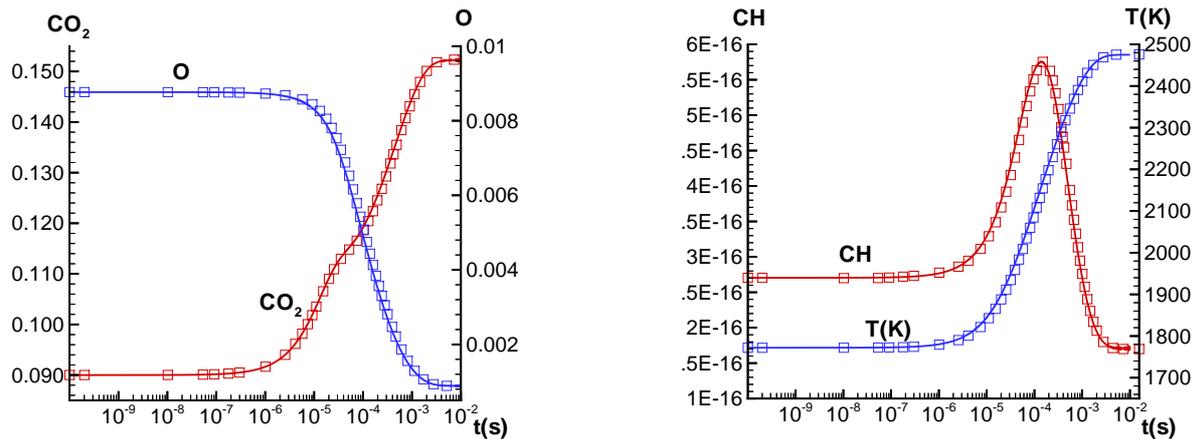


Abbildung 9.1 Simulation eines homogenen, stöchiometrischen Dekan-Luft-Gemischs bei  $p = 1$  bar. Die Enthalpie entspricht einer Temperatur des Oxidationsmittels von 800 K. Die Simulation mit detaillierter Chemie ist durch die Symbole gekennzeichnet, die Rechnung mit reduzierter Chemie ist durch Linien dargestellt.

wegt wird. Die ILDM-Methode ist im Gegensatz zu vielen anderen Methoden zur Reduktion eines detaillierten Reaktionsmechanismus in der Lage, die Konzentrationen von Radikalen vorherzusagen, die in sehr kleinen Konzentrationen auftreten (z. B. CH in Abb. 9.1). Dies ist besonders bei der Untersuchung der Schadstoffbildung wichtig, die stark von den Radikalkonzentrationen abhängig ist.

Die perfekte Übereinstimmung der Simulationsergebnisse ist nur bei Verwendung eines sehr feinen Gitters bei der ILDM-Tabelle gewährleistet. Hier wurde für die Massenbrüche der Reaktionsfortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  eine Schrittweite von  $5 \cdot 10^{-4}$  gewählt.

### 9.3.2 Untersuchung der Relaxation auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit

Es wurde ein System untersucht, dessen Startpunkt weder auf der ein- noch auf der zwei-dimensionalen Mannigfaltigkeit liegt (Abbildung 9.2). Die Simulation wurde mit detaillierter Chemie und der ILDM-Methode unter Verwendung von einer bzw. zwei Fortschrittsvariablen durchgeführt.

Bei der Simulation mit der ILDM-Methode wurde der Startpunkt auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit projiziert. Die Abweichung des projizierten Zustands vom ursprünglichen Startwert nimmt mit zunehmender Dimension der verwendeten ILDM ab. Bei Verwendung von nur einer Fortschrittsvariable stimmt lediglich der  $\text{CO}_2$ -Massenbruch mit dem ursprünglichen Wert überein, während bei zwei Fortschrittsvariablen auch der  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenbruch denselben Wert hat.

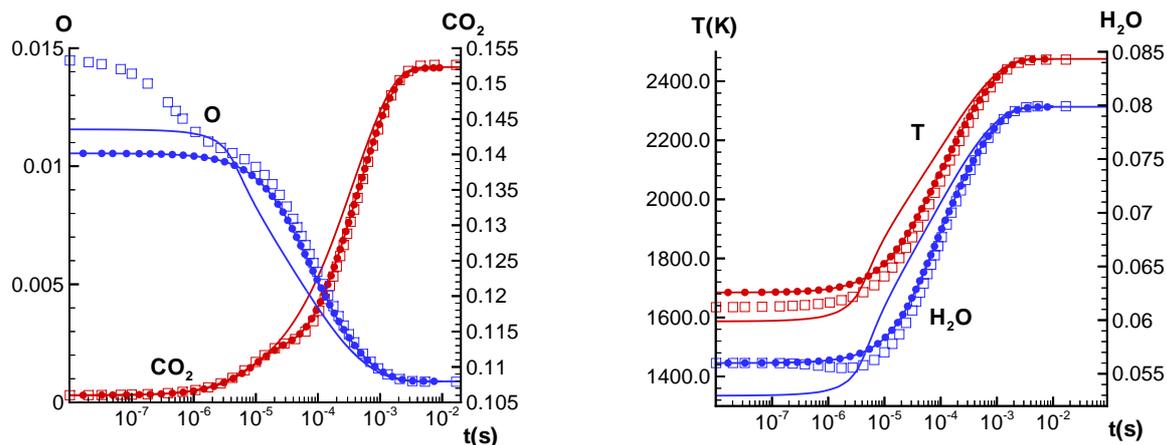


Abbildung 9.2 Untersuchung der Relaxation auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit in Abhängigkeit von der Dimension der ILDM. Die Simulation mit detaillierter Chemie ist mit den Quadraten bezeichnet, die Rechnung mit der eindimensionalen ILDM ist durch eine Linie gekennzeichnet und die mit der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit durch eine Linie mit Kreisen.

Es ist zu sehen, daß eine schnelle Relaxation dieses Startwertes auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit erfolgt. Sowohl bei der Rechnung mit einer als auch mit zwei Reaktionsfortschrittsvariablen sind in den ersten Mikrosekunden starke Abweichungen von der Beschreibung mit detaillierter Chemie zu beobachten. Allerdings ist zu erkennen, daß je höher-dimensional die verwendete Mannigfaltigkeit ist, umso schneller die Annäherung an die ILDM erfolgt. Bei der Simulation mit einer Fortschrittsvariable dauert dieser Prozess ca. 500  $\mu$ s, während bei der Beschreibung mit einer zweidimensionalen ILDM schon nach ca. 20  $\mu$ s die Ergebnisse zwischen detaillierter und reduzierter Chemie nahezu identisch sind. Ist der Relaxationsprozess abgeschlossen, so ergibt sich wieder eine perfekte Übereinstimmung zwischen reduzierter und detaillierter Chemie.

# Kapitel 10

## Simulation laminarer Flammen mit detaillierter und reduzierter Chemie

### 10.1 Einleitung

Eindimensionale vorgemischte laminare Flammen stellen ein sehr gutes Testbeispiel für die mit der ILDM-Methode reduzierten chemischen Mechanismen dar. In diesen laminaren Flammen existieren alle für Verbrennungsprozesse typische Bereiche. Es gibt eine kalte Zone mit nur sehr langsamen chemischen Prozessen, eine Reaktionszone, in der die chemischen Prozesse stattfinden und in der die Wärmefreisetzung durch die Kopplung mit der Dichte das Strömungsfeld beeinflusst, und einen Bereich mit dem verbrannten Gas, der im Wesentlichen durch die Gleichgewichtschemie beschrieben werden kann. Bei laminaren Flammen sind die physikalischen Transportprozesse von entscheidender Bedeutung; darum kann an ihnen die Wechselwirkung der physikalischen Prozesse mit den schnellen chemischen Zeitskalen untersucht werden. Es soll untersucht werden, wie sich bei der Verbrennung von höheren Kohlenwasserstoffen die Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit auf die Simulationsergebnisse auswirkt.

Im Gegensatz zu turbulenten Verbrennungssystemen ist bei laminaren Flammen keine Mittelung der physikalischen und chemischen Größen notwendig, die zum Schließungsproblem bei turbulenten Systemen führt. Daher treten bei laminaren Strömungen keine zusätzlichen Fehlerquellen durch die notwendige Modellierung einiger Terme auf. Zudem ist es bei eindimensionalen laminaren Verbrennungssystemen noch möglich, eine Simulation mit detaillierter Chemie durchzuführen. Dies ermöglicht einen direkten Vergleich zwischen der Simulation mit detaillierter und reduzierter Chemie.

Im Folgenden soll besonders auf den Einfluß der Dimension der ILDM eingegangen werden und untersucht werden, ob die in Kapitel 8 vorgestellte Implementation einer Mannigfaltigkeit mit variabler Dimension auch in Systemen mit physikalischen Transportprozessen erfolgreich durchgeführt werden kann.

## 10.2 Erhaltungsgleichungen für eindimensionale laminare Flammen

Für Verbrennungssysteme lauten die Navier-Stokes-Gleichungen:

Erhaltung der Gesamtmasse

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \bar{v}) = 0, \quad 10.1$$

Erhaltungsgleichung für die Speziesmassenbrüche

$$\frac{\partial w_i}{\partial t} + \frac{1}{\rho} \operatorname{div}(j_i) + \bar{v} \operatorname{grad}(w_i) = \frac{1}{\rho} M_i S_i(\bar{w}), \quad 10.2$$

Impulserhaltung

$$\frac{\partial \bar{v}}{\partial t} + (\bar{v} \operatorname{grad}) \bar{v} + \frac{1}{\rho} \operatorname{grad}(p) + \frac{1}{\rho} \operatorname{div}(\bar{\bar{p}}) = \bar{g}, \quad 10.3$$

Erhaltungsgleichung für die Enthalpie

$$\frac{\partial(\rho h)}{\partial t} - \frac{\partial p}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \bar{v} h + \bar{j}_q) + \bar{\bar{p}} : \operatorname{grad}(\bar{v}) - \operatorname{div}(\bar{\bar{p}} \bar{v}) = q_r. \quad 10.4$$

$\bar{g}$  ist dabei die Beschleunigung aufgrund der Gravitation,  $q_r$  berücksichtigt die Energieänderung aufgrund der Fernwirkung (z.B. durch Strahlung).

Zur Schließung des Gleichungssystems kann das ideale Gasgesetz genutzt werden,

$$p = \frac{\rho}{M} R_{\text{Gas}} T. \quad 10.5$$

Der Term für den Diffusionsstrom  $\bar{j}_i$  der Spezies  $i$ , die Wärmestromdichte  $\bar{j}_q$  und der Drucktensor  $\bar{\bar{p}}$  müssen dabei modelliert werden. Dabei werden üblicherweise folgende Annahmen gemacht:

$$\bar{j}_i = -\frac{\rho w_i}{x_i} D_i \operatorname{grad} x_i - \frac{\rho D_i^T}{T} \operatorname{grad} T. \quad 10.6$$

Der erste Term beschreibt den Massentransport aufgrund der Konzentrationsgradienten nach dem Fickschen Gesetz der zweite Term modelliert die Thermodiffusion.

Die Wärmestromdichte wird durch

$$\vec{j}_q = -\lambda \text{grad } T + \sum_{i=1}^{n_s} h_i \vec{j}_i \quad 10.7$$

beschrieben. Dabei wird das Fouriersche Wärmeleitungsgesetz verwendet.

Für den Drucktensor kann nach dem Newtonschen Schubspannungsgesetz die Beziehung

$$\begin{aligned} \bar{\bar{p}} &= p\mathbf{E} + \Pi \\ \Pi &= -\mu \left( \text{grad } \vec{v} + \text{grad } \vec{v}^T - \frac{2}{3} \text{div}(\vec{v})\mathbf{E} \right) \end{aligned} \quad 10.8$$

verwendet werden.  $\mathbf{E}$  bezeichnet dabei die Einheitsmatrix,  $\mu$  den Viskositätskoeffizienten.

## 10.3 Simulation einer eindimensionalen laminaren freien Flamme

### 10.3.1 Verwendete physikalische Modelle

In dieser Arbeit soll eine laminare freie Vormischflamme untersucht werden. Zur Simulation des Verbrennungssystems wurde das Programm MIXRUN verwendet, in das die ILDM-Software implementiert wurde. Der numerischen Algorithmus und die verwendeten chemischen und physikalischen Modelle bei der Simulation mit einem detaillierten Reaktionsmechanismus sind detailliert in [23-26] beschrieben. Daher soll hier nicht weiter darauf eingegangen werden.

Das Ziel der Untersuchung war es, die Implementation eines mit der ILDM-Methode reduzierten chemischen Mechanismus in ein CFD-Programm zu testen. An diesem einfachen Beispiel sollen die in dieser Arbeit beschriebenen Modelle getestet werden, wie z.B. die Verwendung einer variablen Dimension der Mannigfaltigkeit. Es sollen bei der Simulation der eindimensionalen laminaren Flamme nur solche Modelle verwendet werden, die auch in komplexen (turbulenten) Verbrennungssystemen benutzt werden können.

Viele nicht vorgemischte Flammen können als Zweistromprobleme behandelt werden. Der eine Strom ist dabei der Brennstoff und der andere das Oxidationsmittel. Mit Hilfe der Elementmassenbrüche  $w_i^e$  lassen sich Elementmischungsbrüche  $\xi_i$  definieren:

$$\xi_i = \frac{w_i^e - w_i^{e,\text{Ox.}}}{w_i^{e,\text{Brenn.}} - w_i^{e,\text{Ox.}}} \quad . \quad 10.10$$

Oft sind die Diffusionskoeffizienten der Spezies sehr ähnlich, so daß man von gleichen Diffusionskoeffizienten für alle Spezies ausgehen kann. Dann sind die so definierten Elementmischungsbrüche unabhängig vom gewählten Element und können durch einen einzigen Mischungsbruch beschrieben werden. Bei der Simulation mit niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten wird fast immer diese Näherung verwendet, da sich dadurch die Dimension der ILDM-Tabellen deutlich verringert. Daher wird auch hier die Mischung des unverbrannten Gases immer so gewählt, daß sie einem Mischungsbruch entspricht. Dabei soll als Oxidationsmittel Luft und als Brennstoff Dekan verwendet werden.

Die Lewiszahl  $Le$  wird als

$$Le = \frac{\lambda}{D\rho c_p} \quad 10.11$$

definiert. Dabei ist  $\lambda$  der Wärmeleitkoeffizient,  $D$  der Diffusionskoeffizient. In vielen Anwendungen ist  $Le \approx 1$ . Können zusätzlich Wärmeverluste vernachlässigt werden, so koppelt die Enthalpie als skalare Erhaltungsgröße an den Mischungsbruch. Es braucht in diesem Fall keine zusätzliche Erhaltungsgleichung für die Temperatur gelöst werden, wenn das Mischungsbruchfeld bekannt ist. Auch bei den hier durchgeführten Rechnungen mit reduzierter Chemie wurde diese Näherung verwendet. Da von laminaren Vormischflammen ausgegangen wird, ist die Enthalpie konstant, und die Temperatur hängt nur von den Reaktionsfortschrittsvariablen ab und kann aus der ILDM-Tabelle eingelesen werden.

### 10.3.2 Implementation der reduzierten Chemie

Ein Ziel der Untersuchungen ist, es eine einfache Implementation der reduzierten Chemie in ein CFD-Programm zu finden. Diese Implementation soll auch für komplexe Verbrennungssysteme geeignet sein. Daher sollte die Zahl der zu lösenden Erhaltungsgleichungen möglichst klein gehalten werden. Bei der Simulation mit der reduzierten Chemie werden nur die Erhaltungsgleichungen 10.2 für die Reaktionsfortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und eventuell  $\text{O}_2$  gelöst. Die übrigen Spezieskonzentrationen werden dabei aus der ILDM-Tabelle eingelesen und sind lediglich von den Werten der Reaktionsfortschrittsvariablen abhängig. Wie in 10.3.1 beschrieben, soll keine Erhaltungsgleichung für die Enthalpie/Temperatur gelöst werden, sondern die Temperatur wird ebenfalls aus der ILDM-Tabelle eingelesen. Der große Vorteil dieser Implementation ist, daß nur zwei oder drei Erhaltungsgleichungen zu lösen sind; sie kann daher auch bei der Simulation von komplexen dreidimensionalen Verbrennungssystemen angewendet werden.

Ein Nachteil ist allerdings, daß für Bereiche, in denen keine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit existiert, das in 6.2 beschriebene Modell genutzt werden muß. An der Grenze zwischen ILDM-reduzierten Bereich und dem Gebiet mit einem nahezu unverbrannten Gemisch kommt es zu einer Unstetigkeit im Verlauf der Temperatur und damit auch der Dichte. Durch die lineare Interpolation innerhalb der ILDM-Tabelle erhält man zwar eine stetige Funktion dieser Größen, doch werden die Gradienten in diesem Bereich sehr groß. Dies führt unter Umständen zu numerischen Instabilitäten.

Diese Unstetigkeit im Temperaturverlauf ist auch der Grund dafür, daß einige Modifikationen im Programm zur Simulation der laminaren Flamme nötig waren. So wird bei der Simulation mit reduzierter Chemie die Breite des Gitters im CFD-Programm nicht mehr über den Temperaturgradienten gesteuert, sondern sie wird fest vorgegeben.

Kommt es im Laufe der numerischen Berechnung des Flammenprofils dazu, daß Konzentrationen den Gleichgewichtswert übersteigen, so sorgen bei der Simulation mit detaillierter Chemie sehr schnelle chemische Reaktionen dafür, daß diese Spezies wieder abgebaut werden. Bei der Simulation mit reduzierter Chemie wird aber für Konzentrationen der Fortschrittsvariablen, die den Gleichgewichtswert übersteigen, meist keine ILDM mehr gefunden, und es fehlt diese schnelle Rückreaktion. Daher ist es sinnvoll, keine Konzentrationen oberhalb des Gleichgewichtes zuzulassen. Die Gleichgewichtskonzentration kann dabei mit Hilfe einer homogenen Rechnung auch aus der ILDM-Tabelle bestimmt werden.

## 10.4 Simulationsergebnisse einer freien laminaren Vormischflamme

Als Beispiel soll eine freie laminare Vormischflamme für ein Dekan-Luft-Gemisch bei verschiedene Stöchiometrien untersucht werden. Dekan-Luft-Systeme stellen ein realistisches Beispiel für die Verwendung reduzierter Mechanismen dar, da Dekan oft als Modell-Brennstoff für Kerosin dient, das bei der Verbrennung in Turbinen als Kraftstoff dient.

Am Beispiel von drei verschiedenen Gemischzusammensetzungen soll untersucht werden wie sich die Anzahl der Fortschrittsvariablen auf die Simulationsergebnisse auswirkt. Es wurden daher Simulationen mit einer zweidimensionalen und einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit durchgeführt und die Ergebnisse mit einer Berechnung unter Verwendung des detaillierten Reaktionsmechanismus verglichen. Bei der Berechnung der Vormischflammen mit drei Reaktionsfortschrittsvariablen kam dabei das Konzept einer ILDM mit variabler Dimension zu Anwendung.

Die Flammenfront einer freien Vormischflamme bewegt sich mit der Flammengeschwindigkeit durch den Raum; daher kann eine Ortangabe nur relativ zur Flammenfront erfolgen.

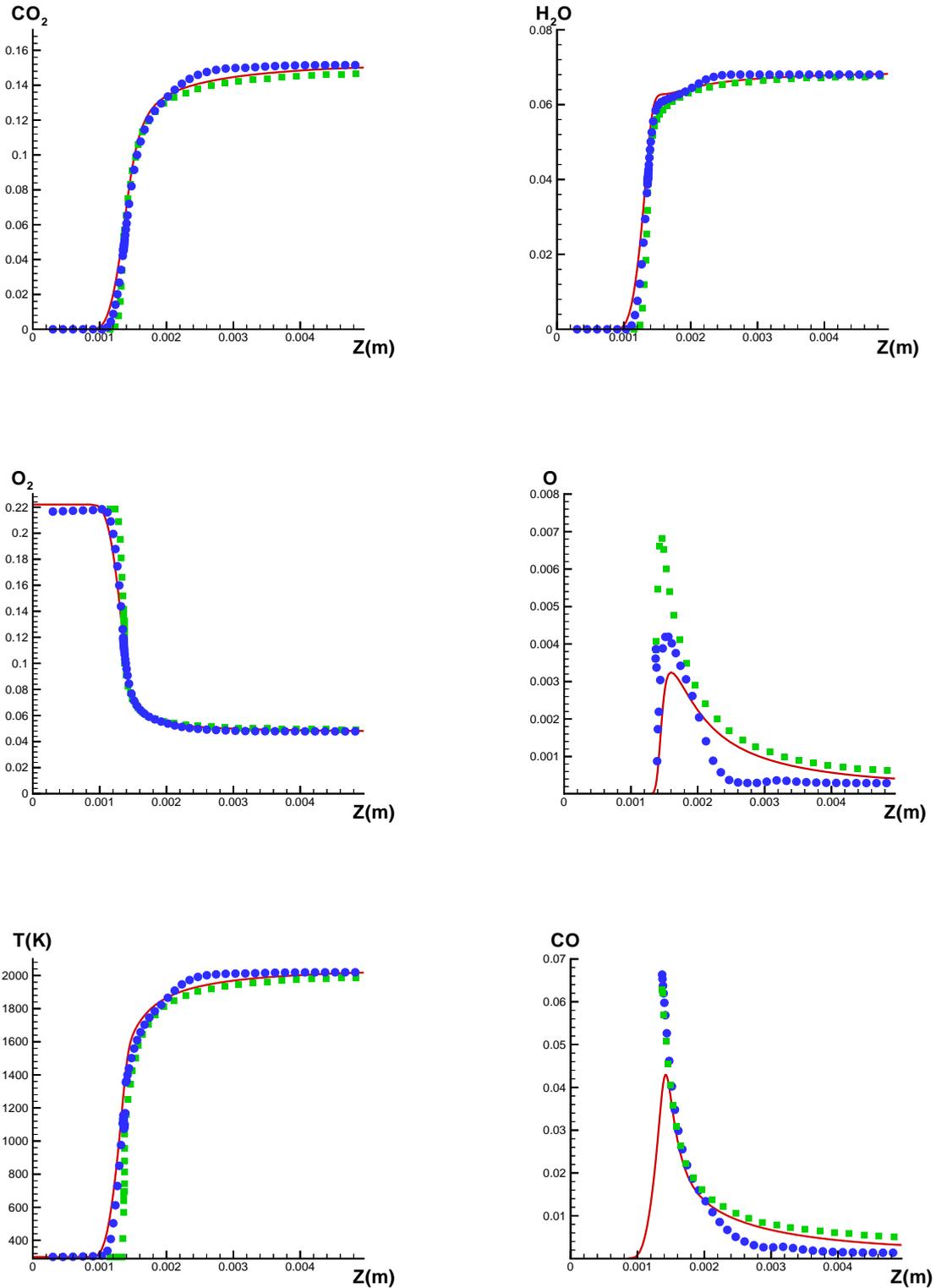


Abbildung 10.1 Simulation einer eindimensionalen laminaren Vormischflamme für ein Dekan-Luft-Gemisch mit einem Mischungsbruch von 0,07. Rote Linie: Simulation mit dem detaillierten Mechanismus, grüne Rechtecke: ILDM mit zwei Fortschrittsvariablen, blaue Rechtecke ILDM mit drei Fortschrittsvariablen.

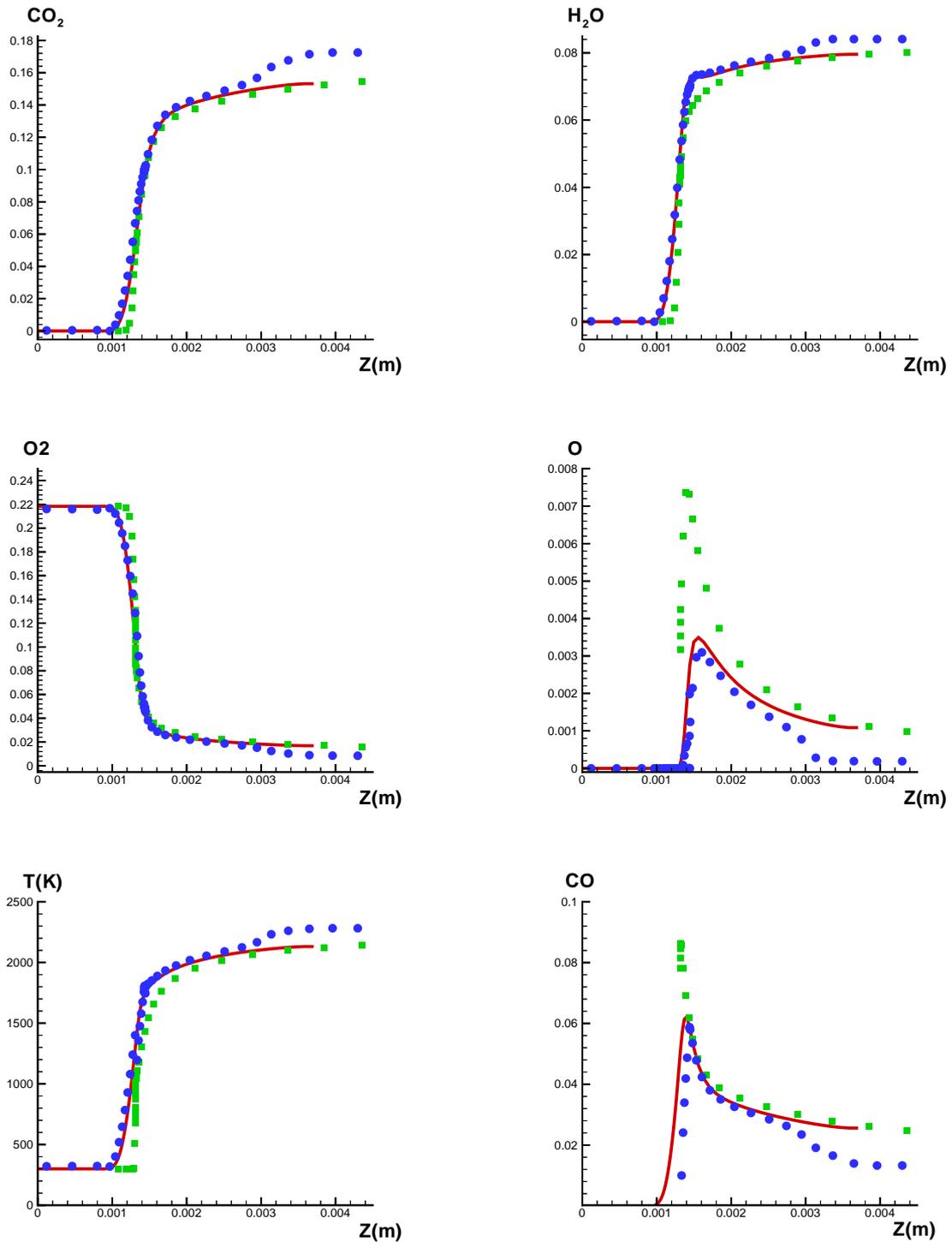


Abbildung 10.2 Simulation einer eindimensionalen laminaren Vormischflamme für ein stöchiometrisches Dekan-Luft-Gemisch (Mischungsbruch 0,062). Rote Linie: Simulation mit dem detaillierten Mechanismus, grüne Rechtecke: ILDM mit zwei Fortschrittsvariablen, blaue Rechtecke ILDM mit drei Fortschrittsvariablen.

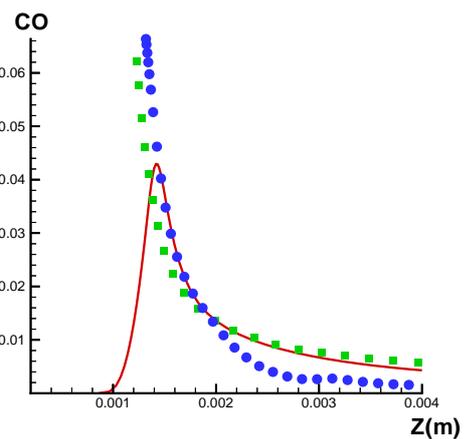
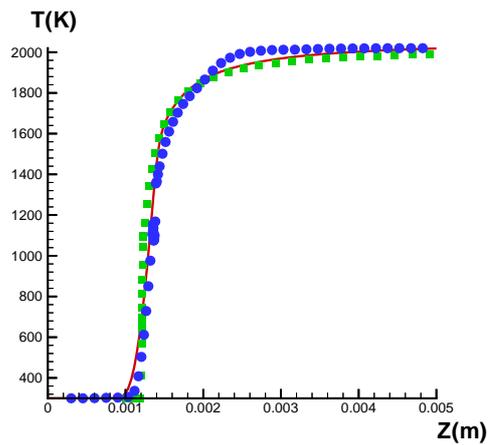
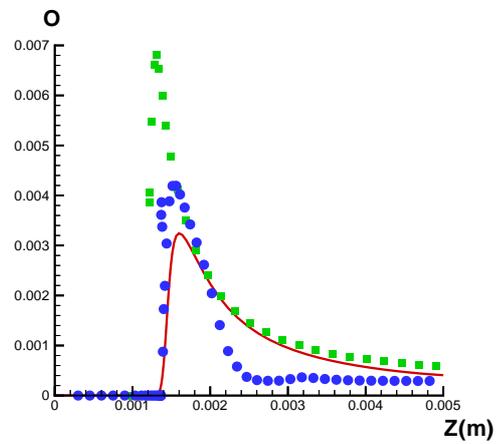
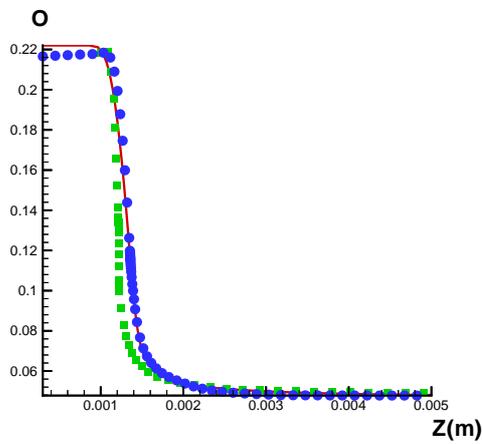
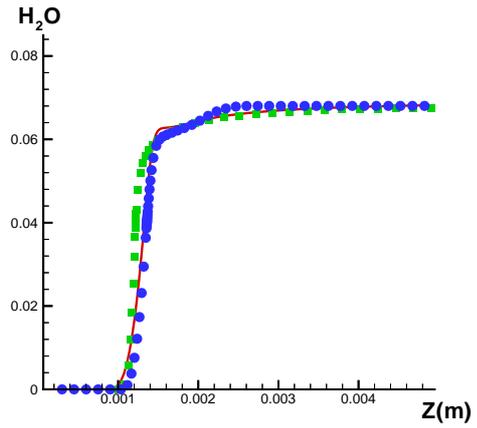
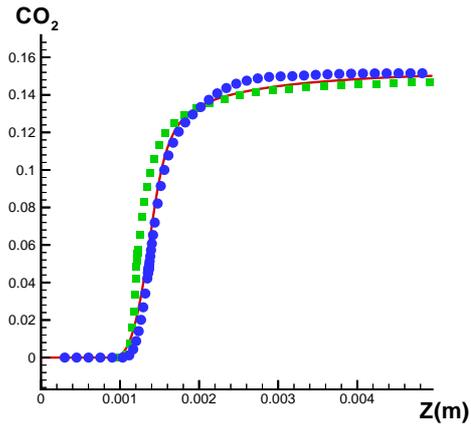


Abbildung 10.3 Simulation einer eindimensionalen laminaren Vormischflamme für ein Dekan-Luft-Gemisch mit einem Mischungsbruch von 0,5. Rote Linie: Simulation mit dem detaillierten Mechanismus, grüne Rechtecke: ILDM mit zwei Fortschrittsvariablen, blaue Rechtecke ILDM mit drei Fortschrittsvariablen.

Bei den Abbildungen 10.1-10.3 wurde dabei die Koordinate  $Z$  so gewählt, daß die Lage der Flammenfront für alle drei Simulation am gleichen Ort liegt, da nur so ein Vergleich der Ergebnisse möglich ist.

Im kalten Bereich, in dem eine Beschreibung der Flamme mit der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit nicht möglich war, ist keine sinnvolle Vorhersage der Radikalkonzentrationen möglich. In diesem Bereich wurden nur die Werte für die Temperatur und die Reaktionsfortschrittsvariablen eingezeichnet.

## 10.5 Diskussion der Ergebnisse

Bei der Simulation mit reduzierter Chemie können die gleichen Startprofile wie bei detaillierter Chemie verwendet werden. Es muß nur darauf geachtet werden, daß der Schätzwert für das verbrannte Gas nicht höher ist als der Gleichgewichtswert, da in diesem Bereich keine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit zur Verfügung steht.

Besonders bei der Simulation unter Verwendung einer dreidimensionalen Mannigfaltigkeit war darauf zu achten, daß der relative Zeitschritt genügend klein gewählt wird, da sonst keine konvergente Lösung gefunden wird. Aufgrund der relativ großen Gradienten an der Grenze der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit zeigt die Lösung eine leichte Oszillation.

Das etwas schlechtere Konvergenzverhalten bei der Simulation mit reduzierter Chemie ist im Wesentlichen darauf zurückzuführen, daß der CFD-Code für die Simulation mit detaillierter Chemie optimiert wurde. Die Besonderheiten bei der Nutzung des reduzierten Mechanismus wurden dabei nicht berücksichtigt (siehe Kapitel 9.2).

Für die Reaktionsfortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  ergibt sich sowohl für die Simulation mit einer zweidimensionalen ILDM als auch bei Verwendung von drei Fortschrittsvariablen eine relativ gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus der Simulation mit detaillierter Chemie. Bei einer dreidimensionalen ILDM ist aber die Übereinstimmung im Bereich der Flammenfront besser. Dort wird die Verbrennung bei der Simulation mit der zweidimensionalen Mannigfaltigkeit zu schnell vorhergesagt; was sich in der größeren Steigung im Flammenprofil zeigt. Allerdings wird das Einstellen des Gleichgewichts besser als bei der dreidimensionalen ILDM vorhergesagt, dies wird besonders bei dem stöchiometrischen Gemisch in Abbildung 10.2 deutlich. Die moderaten Abweichungen der Fortschrittsvariablen  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{O}_2$  in der Nähe des Gleichgewichts machen sich bei den Radikalprofilen allerdings deutlich bemerkbar.

Bei der Vorhersage der Radikalkonzentration von  $\text{O}$  wird bei zwei Fortschrittsvariablen die maximale Konzentration um einen Faktor von zwei bis drei überschätzt, während bei drei

Fortschrittsvariablen dieser Wert deutlich besser vorhergesagt werden kann. Die O-Radikalkonzentration ist für die Vorhersage der thermischen  $\text{NO}_x$ -Bildung von zentraler Bedeutung. Daher sollte bei atmosphärischen Druck eine dreidimensionale ILDM verwendet werden, um diese Schadstoffbildung zuverlässig zu simulieren.

Die Ergebnisse dieser Rechnungen zeigen, daß mit Hilfe von niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten Dekan-Luft-Systeme simuliert werden können. Schon bei Beschreibung der Chemie mit zwei oder drei Variablen ist man in der Lage, solche Verbrennungssysteme erfolgreich zu beschreiben.

# Kapitel 11

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein Programm zur automatischen Generierung reduzierter Reaktionsmechanismen mit der ILDM-Methode weiterentwickelt. Mit diesen reduzierten Mechanismen wurden homogene Systeme und laminare Vormischflammen berechnet und mit Simulationsergebnissen bei Verwendung von detaillierten Reaktionsmechanismen verglichen.

Die Reduktion von chemischen Systemen mit ILDM basiert auf einer lokalen Eigenwertanalyse des chemischen Systems. Es wird davon ausgegangen, daß die schnellen Zeitskalen im System bereits abgeklungen sind und man sich auf einer niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit befindet. Dann kann die gesamte Dynamik durch wenige langsame Zeitskalen beschrieben werden.

Chemische Reaktionssysteme sind durch eine sehr große Steifheit und eine sehr große Nichtlinearität gekennzeichnet. Diese ist bei höheren Kohlenwasserstoffen als Brennstoff noch größer als bei Methan. Daher war ein Ziel der Arbeit, einen Algorithmus zu entwickeln, mit dem die niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeiten erfolgreich bestimmt werden können.

Die Berechnung der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit ist sehr aufwendig; daher werden bereits berechnete Punkte auf der Mannigfaltigkeit in Tabellen gespeichert. Diese werden aber schon bei vier Tabellenkoordinaten, z. B. Temperatur, Mischungsbruch und zwei Reaktionsfortschrittsvariablen, sehr groß und belegen oft mehrere 100 MB Speicherplatz.

Es ist daher nötig, Datenstrukturen zu entwickeln, die einen schnellen Zugriff auf die Daten erlauben. Dies konnte durch Verwendung von teilweise ausbalancierten binären Suchbäumen erreicht werden.

Die Generierung solcher ILDM-Tabellen ist sehr rechenzeitintensiv und benötigt auf einer Workstation oft mehrere Wochen. Daher wurde ein Algorithmus entwickelt, der die Parallelisierung der Tabellenerzeugung erlaubt. Es wurde ein Ansatz gewählt, der bei beliebigen zu reduzierenden Systemen genutzt werden kann. Ein Prozessor steuert dabei die Tabellengenerierung und die Verwaltung der ILDM-Tabelle, während die übrigen Prozessoren die rechenintensive Bestimmung der Punkte auf der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit übernehmen. Dieser Algorithmus wurde erfolgreich auf einem Netzwerk von Workstations implementiert und auf seine Effizienz untersucht.

Die Beschreibung eines chemischen Systems in der Nähe des Gleichgewichtes mit drei Fortschrittsvariablen ist oft problematisch. Besser ist es, in diesem Bereich eine ein- oder zweidimensionale Mannigfaltigkeit zu nutzen. Daher ist es sinnvoll, eine niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit mit einer variablen Dimension zu verwenden. In dieser Arbeit

wurde eine einfache Implementation einer niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit mit variabler Dimension in ein CFD-Programm entwickelt, bei der die Navier-Stokes-Gleichungen immer für eine konstante Anzahl von wenigen Variablen zu lösen sind. Diese Implementation wurde in der Simulation von homogenen Systemen und von laminaren Vormischflammen validiert.

Die mit der ILDM-Methode automatisch generierten Mechanismen für höhere Kohlenwasserstoffe wurden in homogenen Systemen getestet. Dabei wurde ein besonderes Augenmerk auf den Einfluß der Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit gelegt. Unabhängig von der gewählten Dimension kann ein auf die niedrig-dimensionale Mannigfaltigkeit relaxierter Zustand perfekt durch die ILDM in homogenen Systemen beschrieben werden. Selbst Radikalkonzentrationen können durch dieses Reduktionsverfahren richtig vorhergesagt werden. Der Einfluß der Dimension der niedrig-dimensionalen Mannigfaltigkeit macht sich aber stark bei Wahl eines beliebigen Startwertes für die homogene Rechnung bemerkbar. Je höher die Dimension der Mannigfaltigkeit, umso besser kann dieser Startwert auf die Mannigfaltigkeit projiziert werden und umso schneller erfolgt die Relaxation auf die ILDM.

Um den Einfluß der physikalischen Transportprozesse auf die Beschreibung des chemischen Systems mit niedrig-dimensionalen Flammen zu untersuchen, wurden freie laminare Vormischflammen mit verschiedenen Stöchiometrien untersucht. Laminare Vormischflammen sind besonders geeignet, reduzierte Mechanismen unter realistischen Bedingungen zu testen. In ihnen sind alle für einen Verbrennungsprozeß typischen Bereiche vorhanden, und es besteht trotzdem noch die Möglichkeit, die Ergebnisse direkt mit denen der detaillierten Chemie zu vergleichen. Es wurde ein Dekan-Luft-System bei Normaldruck untersucht, sowohl mit zwei als auch mit variabler Dimension der Fortschrittsvariablen (maximal drei).

Die Simulationsergebnisse zeigen eine relativ gute Übereinstimmung der Speziesprofile für die Fortschrittsvariablen sowohl bei der zwei wie auch bei dreidimensionalen Mannigfaltigkeit. Bei der dreidimensionalen ILDM kann die Flammenfront besser vorhergesagt werden, allerdings sind die Abweichung für das verbrannte Gas etwas größer.

Sollen aber Radikalkonzentrationen richtig bestimmt werden, so muß mindestens eine dreidimensionale Mannigfaltigkeit bei diesem System verwendet werden. Bei zwei Fortschrittsvariablen wird der Maximalwert für die O-Radikale um das zwei- bis dreifache überschätzt, während bei drei Fortschrittsvariablen dieser Wert deutlich besser wiedergegeben wird.

# Literaturverzeichnis

- [1] J. Warnatz, *The Structure of Laminar Alkane-, Alkene-, and Acetylene Flames*, 18<sup>th</sup> Symp (Int) Comb, The Combustion Institute, 1981.
- [2] Smooke M.D., *Reduced Kinetic Mechanism and Asymptotic Approximation for Methane-Air-Flames*, Lecture Notes in Physics 384, Springer, 1991.
- [3] Peters N. und Rogg B., *Reduced Kinetic Mechanisms for Applications in Combustion Systems*, Springer, 1993.
- [4] Homann K.H., *Reaktionskinetik*, Steinkopff, 1975.
- [5] R.J. Kee, F.M. Rupley, J. A. Miller, *The Chemkin Thermodynamic Data Base*, Sandia Report SAND87-8215 UC4, 1987.
- [6] A. Burcat, B. McBride, *Ideal Gas Thermodynamic Data for Combustion and Air-Pollution Use*, TAE Report No 697 Technion Haifa.
- [7] S.W. Benson, *Thermochemical Kinetics*, John Wiley & Sons, 1976.
- [8] D. Schmidt, *Modellierung reaktiver Strömungen unter Verwendung reduzierter Reaktionsmechanismen*, Dissertation, 1996.
- [9] U. Maas, *Automatische Reduktion von Reaktionsmechanismen zur Simulation reaktiver Strömungen*, Habilitation, 1993.
- [10] M. Braun, *Differentialgleichungen und ihre Anwendungen*, Springer, 1988.
- [11] F. R. Gantmacher, *Matrizentheorie*, Springer, 1986.
- [12] N. Wirth, *Algorithmen und Datenstrukturen*. Teubner Verlag, 1983.
- [13] T. Blasenbrey, *Entwicklung und Implementierung automatisch reduzierter Reaktionsmechanismen für die Verbrennung von Kohlenstoffen*, Dissertation, 2000.
- [14] H. Niemann, *Niedrigdimensionale Modellierung Dynamischer Systeme am Beispiel reduzierter Reaktionssysteme*, Dissertation 2002.
- [15] R.H. Güting, *Datenstrukturen und Algorithmen*, Teubner Verlag, 1983.

- [16] P. Deuflhard, E. Hairer und J. Zugck, *Recent Progress in Extrapolation Methods for Ordinary Differential Equations*, Technical report, SFB 123, Universität Heidelberg, Technischer Report 224, 1985.
- [17] P. Deuflhard and U. Nowak, *Extrapolation Integrators for Quasilinear Implicit ODE's*, In B. Enquist P. Deuflhard, editor, Large Scale Scientific Computing, Progress in Scientific Computing Vol 7, Birkhäuser, 1987.
- [18] B. Schramm, *Erstellung reduzierter Reaktionsmechanismen und deren Anwendung bei der Simulation turbulenter Flammen*, Diplomarbeit, 1999.
- [19] C. Correa, *Combustion Simulations in Diesel Engines using Reduced Reaction Mechanism*, Dissertation, 2000.
- [20] Neil Mac Donald, Elspeth Minty, Tim Harding, Simon Brown, *Writing Message Passing Parallel Programs with MPI*, Course Notes Edinburgh Parallel Computing Centre.
- [21] P. Rechenberg, G. Pomberger, *Informatik Handbuch*, Hanser Verlag, 1999.
- [22] C. Correa, H. Niemann, B. Schramm, J. Warnatz, *Reaction Mechanism Reduction For Higher Hydrocarbons Oxidation by the ILDM Method*, 28<sup>th</sup> Symposium on Combustion, 2000.
- [23] J. Warnatz, *Calculation of the Structure of Laminar Flat Flames I: Flame Velocity of Freely Propagating Ozone Decomposition Flames*, Berichte Bunsenges. Phys. Chem. 82, Verlag Chemie, 1978.
- [24] J. Warnatz, *Calculation of the Structure of Laminar Flat Flames II: Flame Velocity and Structures of Freely Propagating Hydrogen-Oxygen and Hydrogen-Air Flames*, Berichte Bunsenges. Phys. Chem. 82, Verlag Chemie, 1978.
- [25] J. Warnatz, *Calculation of the Structure of Laminar Flat Flames III: Structure of Burner-Stabilized Hydrogen-Oxygen and Hydrogen-Fluorine*, Bericht Bunsenges. Phys. Chem. 83, Verlag Chemie, 1979.
- [26] J. Warnatz, *The Structure of Freely Propagating and Burner-Stabilized Flames in H<sub>2</sub>-CO-O<sub>2</sub> System*, Berichte Bunsenges. Phys. Chem. 83, Verlag Chemie, 1979.
- [27] U. Maas, S. Pope, *Simplifying Chemical Kinetics: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space*, Comb Flame 88:239-264, 1992.

- [28] U. Maas, S. Pope, *Implementation of Simplified Chemical Kinetics Based on Intrinsic Low-Dimensional Manifolds*, 24<sup>th</sup> Symposium (International) on Combustion, 1993.
- [29] R. Merz, L. Litz, *Regeltechnisches Tutorial*, SFB 501 Teilprojekt D2 Report06, 2000.
- [30] H.Lutz, W. Wendt, *Taschenbuch der Regeltechnik*, Verlag Harri Deutsch, 2002.

# Danksagung

An dieser Stelle soll all denjenigen gedankt werden, die in irgendeiner Form am Zustandekommen dieser Arbeit mitgewirkt haben.

Insbesondere danke ich:

Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. Jürgen Warnatz für die Aufgabenstellung sowie die Förderung der Arbeit in jeder Hinsicht.

Herrn Prof. Dr. Schramm für die Übernahme der Begutachtung.

Herrn Dipl.-Ing. Holger Niemann für die vielen interessanten Diskussionen zu allen Themenbereichen dieser Arbeit.

Herrn Dipl.-Chem. Volker Karbach für die zur Verfügung gestellten detaillierten Reaktionsmechanismen.

Frau Dr. Chrys Correa für die interessante und produktive Zusammenarbeit.

Den Herren Dipl.-Ing. Tillmann Katzenmeier und Dipl.-Chem. Stefan Kleditzsch für die Unterstützung im Umgang mit der Hard- und Software.

Meinen Zimmerkollegen Herrn Dipl.-Inform. Jürgen Moldenhauer und Frau Dipl.-Phys. Sarah Parmentier für eine angenehme und offene Arbeitsatmosphäre.

Herrn Dipl.-Phys. Steffen Tischer für die sorgfältige Durchsicht dieser Arbeit.

Allen übrigen Mitarbeitern der FG Reaktive Strömung für das angenehme Klima innerhalb und außerhalb des IWR.



# Promotion

03.99-01.2003 Promotion am Interdisziplinären Zentrum für Wissenschaftliches Rechnen der Universität Heidelberg unter Betreuung von Prof. Warnatz  
Titel: Automatische Reduktion chemischer Reaktionsmechanismen am Beispiel der Oxidation höherer Kohlenwasserstoffe und deren Verwendung in reaktiven Strömungen

Erklärung gemäß der Promotionsordnung:

Ich erkläre hiermit, daß ich die vorgelegte Dissertation selbst verfaßt und mich keiner anderen als der von mir ausdrücklich bezeichneten Quellen und Hilfen bedient habe.