

INAUGURAL - DISSERTATION

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

Vorgelegt von
Diplom-Chemiker Axel Hoffmann
aus Weinheim a. d. Bergstraße

Tag der mündlichen Prüfung: 07. Juli 2006

*Strukturanalyse turbulenter Flammen
mit Hilfe abbildender
laserspektroskopischer Verfahren*



Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Wolfrum
Prof. Dr. Christof Schulz

» *Meinen Eltern* «

*In bunten Bildern wenig Klarheit.
Viel Irrtum und ein Fünkchen Wahrheit.
So wird der beste Trank gebraut,
der alle Welt erquickt und aufbaut.*
(J.W. von Goethe, 1749-1832)

KURZFASSUNG

Turbulente magere vorgemischte Flammen spielen aufgrund ihres reduzierten Schadstoffausstoßes bei der Energieumwandlung eine bedeutende Rolle. Verbrennungsinstabilitäten bergen jedoch ein erhöhtes Risiko im technischen Einsatz, da z.B. thermoakustische Schwingungen in Gasturbinen zu verstärkter Materialbeanspruchung führen. Dies stellt auch im Bereich der Flugzeugturbinen eine erhebliche Gefahr dar. Numerische Simulationen erlauben, die Prozesse bei der Verbrennung besser zu verstehen, jedoch sind Direkte Numerische Simulationen technischer Flammen mit heutigen Computeranlagen noch nicht möglich. Vereinfachte Verfahren stützen sich daher häufig auf experimentelle Daten, welche helfen, den erforderlichen Rechenaufwand zu reduzieren. Dazu befasst sich diese Arbeit mit der Bestimmung von Spezieskonzentrationsverteilungen und deren Gradienten in turbulenten Flammen mittels abbildender laserinduzierter Fluoreszenz. Es wird eine Methodik beschrieben, die es ermöglicht, Gradienten im dreidimensionalen Raum für Punkte entlang der Schnittlinie zweier sich senkrecht schneidender Messebenen zu bestimmen. Mittels eines KrF-Excimerlasers mit einer Wellenlänge von 248 nm wurde der $A-X(3,0)$ -Übergang von OH in einer vorgemischten staukörperstabilisierten Erdgas-Luft-Flamme angeregt und die Fluoreszenz in den zwei Messebenen bei 295 nm mit zwei bildverstärkenden CCD-Kameras detektiert. Simultane 1D-Raman-Messungen ermöglichten, die Daten entlang der Schnittlinie mit simultanen Temperatur und Majoritätenspezieskonzentrationen zu vergleichen. Aus den OH-Konzentrationsverteilungen wurden Konzentrationsgradienten im dreidimensionalen Raum berechnet und bezüglich ihrer Korrelation zur lokalen Konzentration untersucht. Solche Korrelationen können zur Vereinfachung von Simulationsansätzen und zu deren Validierung beitragen. Es wurde auch ein Vergleich des realen Gradienten mit seiner Projektion auf jede der Messebenen durchgeführt, da der Betrag durch die Projektion auf die Messebene vom Betrag des realen Gradienten abweicht.

In einem zweiten Experiment wurden Messungen in einem einzelnen Modellbrenner einer stationären Gasturbine unter turbinennahen Betriebsbedingungen durchgeführt. In einer nicht-vorgemischten und einer vorgemischten Erdgas-Luft-Flamme mit und ohne Pilotierung wurde mittels eines XeCl-Excimerlasers bei 308 nm der $A-X(0,0)$ -Übergang von OH angeregt. Die Detektion in einer Messebene entlang der Brennerachse erfolgte resonant bei 308 nm mit Hilfe einer bildverstärkenden CCD-Kamera. Anhand des steilsten Gradienten wurde aus den zweidimensionalen Konzentrationsverteilungen die Flammenfront bestimmt. Die statistische Auswertung der Flammenfronten erlaubte einen Vergleich der Charakteristika der untersuchten Flammen. Ein Vergleich mit der Simulation ergab gute Übereinstimmungen. Neben den stationären Flammen wurden auch zwei Betriebsbedingungen untersucht, bei denen Verbrennungsinstabilitäten auftraten. Kraftstoffschwankungen aufgrund von Strömungsfluktuationen führen zu Oszillationen der Verbrennung, die sich mit Geschwindigkeitsfluktuationen in der Brennkammer zu starken thermoakustischen Schwingungen verstärken können und das System mechanisch belasten. Ein besseres Verständnis der Wirkketten bei der Entstehung dieser Fluktuationen ist daher von grundlegender technischer und theoretischer Bedeutung.

ABSTRACT

Turbulent lean premixed flames play an important role in power plants due to their reduced exhaust emission. However, combustion instabilities hold an increased risk in technical application, as e.g. thermo acoustic oscillations, which have been found in gas turbines, induce increased material stress. This is also a considerable risk concerning flight turbines. Numerical simulations allow a better understanding of combustion processes, however, Direct Numerical Simulation of technical flames is not yet possible with up-to-date computer systems. Thus, simplified models often base on experimental data, which help to reduce the necessary calculation effort. For this reason this thesis deals with the measurement of speciesconcentration distributions and their gradients in turbulent flames by means of laserinduced fluorescence imaging measurements. A methodology is described to measure concentration gradients along the intersection of two perpendicularly crossed detection planes. A KrF excimer laser with an emission wavelength of 248 nm was used to excite the $A-X(3,0)$ transition of OH in a premixed bluff body-stabilized flame. The fluorescence from the two measurement planes was detected via two intensified CCD-cameras. Simultaneous 1D-Raman measurements allowed comparing the data within the intersection line to simultaneously detected temperature and majority species concentrations. From the OH concentration distributions concentration gradients were calculated and analyzed in terms of their correlation to the local concentration. These correlations can contribute to the improvement of simulation approaches and their validation. Also a comparison was drawn between the gradients measured in the three-dimensional space relative to the projections that are detected on either of the observed planes, as the absolute value of the projection on the measuring plane differs from the real gradient. In a second experiment measurements were carried out in a single model burner of a

Kurzfassung – Abstract

stationary gas turbine under turbine-like conditions. In a non-premixed and premixed natural gas/air flame with and without piloting the $A-X(0,0)$ transition of OH was excited with the emission of a XeCl excimer laser at 308 nm. The detection was carried out resonantly at 308 nm in a plane along the burner axis with an intensified CCD camera. By calculating the steepest gradient in the two-dimensional concentration distribution the location of the flame front was detected. The statistical analysis of the detected flame fronts allows a comparison of the characteristics of the flames under study. A comparison with simulated results showed good agreements. In addition to the stationary flames two additional instationary operating conditions were investigated under which combustion instabilities occurred. Fuel inhomogeneities caused by fluctuations of the air flow initiated combustion oscillations. In combination with velocity fluctuations in the burner chamber strong thermo-acoustic vibrations can occur and lead to strong mechanical stress of the system. Thus, a better understanding of the interactions in the formation of these fluctuations is of basic technical and theoretical significance.

Inhaltsverzeichnis

<i>I. Einleitung</i>	1
<i>II. Theoretische Grundlagen</i>	5
1 Einführung und Grundbegriffe	5
1.1 Verbrennung und Flammen	5
1.1.1 Vorgemischte und nicht-vorgemischte Flammen.....	5
1.1.2 Zeitskalen.....	6
1.1.3 Adiabatischer Grenzfall.....	7
1.2 Diffusions- und Turbulenzphänomene	7
1.2.1 Diffusion, laminarer Fall	7
1.2.2 Laminare Strömung	8
1.2.3 Turbulenz.....	8
1.2.4 Reynolds-Zahl	8
1.2.5 Turbulente Diffusion	9
1.2.6 Flamelet-Regime	9
1.3 Verbrennungsrelevante Spezies – Hydroxyl-Radikal (OH)	10
1.3.1 Bedeutung von OH in Verbrennungsprozessen.....	10
1.3.2 Bildung und Reaktionen des OH-Radikals.....	12
1.3.3 Einflüsse der Turbulenz auf die OH-Radikal-Chemie	12
2 Laserspektroskopie	13
2.1 Energiezustände und Nomenklatur	13
2.2 Boltzmann-Statistik.....	15
2.3 Rotations-Schwingungs-Spektren zweiatomiger Moleküle.....	17
2.4 Laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie	18
2.5 Zwei-Niveau-Modell der Fluoreszenz	19
2.6 OH-LIF-Spektroskopie	23
2.6.1 Anregung von OH bei 248 nm	24
2.6.2 Stoßlöschung (Quenching)	26
2.6.3 Anregung von OH bei 308 nm	31
<i>III. Experimentelle Verfahren</i>	33
1 Zweidimensionale laserinduzierte Fluoreszenz (planare LIF, PLIF, 2D-LIF)	33
2 „3D“-Messtechniken.....	34

2.1 Von 2D zu „3D“ – Aufwand und Nutzen.....	34
2.1.1 Anwendung paralleler Schnittebenen.....	37
2.1.2 Anwendung gekreuzter Schnittebenen.....	39
2.1.3 3D-Messungen mit einer Kamera und einem Laser.....	41
IV. Bestimmung von OH-Konzentrationsverteilungen und deren drei-dimensionalen	
Gradienten in einer turbulenten Vormischflamme.....	45
1 Experimenteller Aufbau	45
2 Problemquellen und Störeinflüsse	49
2.1 Laserintensitätsverluste durch optische Elemente.....	49
2.2 Spektrale Strahlungsdichte	50
2.2.1 Photodissoziation	50
2.2.2 Grundzustandsdepopulation (Bleichen)	50
2.3 Spektrale Reinheit.....	51
2.4 Polarisation der laserinduzierten Fluoreszenz.....	51
2.5 Frequenzstabilität des Excimerlasers.....	52
2.6 Strahlwege der Laserstrahlen.....	52
3 Auswerteverfahren zur Bestimmung von OH-Konzentrationen und deren 3D-	
Gradienten.....	53
3.1 Auswertung der Rohdaten	54
3.2 Quantifizierung mittels simulierter LIF-[OH]-Korrelationen	57
3.3 Bestimmung der 3D-Gradienten von OH.....	62
4 Ergebnisse	66
4.1 Simultane 3D-LIF / 1D-Raman-Messungen.....	67
4.2 Korrelationen von OH-Konzentration und 3D-Gradient.....	70
4.2.1 Vergleich mit der Simulation	72
4.3 Korrelationen von 2D- und 3D-Gradienten von OH.....	73
5 Fehlerabschätzung.....	79
V. Bestimmung von Flammenfronten durch Gradientenanalyse der OH-Verteilung in einem	
industriellen Gasturbinenbrenner	83
1 Bestimmung von Flammenfronten	86
2 Experimenteller Aufbau	91
2.1 Brenner und Versuchsstand.....	91
2.2 Laseranregung und optischer Aufbau.....	94

3 Verarbeitung der Daten	97
3.1 Kalibrierung der Messposition.....	97
3.2 Korrektur von Störungen durch Streulicht.....	98
3.3 Störungen des Strahlprofils.....	101
3.4 Bestimmung der Flammenfront durch Gradientenanalyse	104
4 Ergebnisse.....	105
4.1 Stationärer Betrieb	106
4.1.1 Nicht-vorgemischter Betrieb	107
4.1.2 Vorgemischter Betrieb ohne Pilotierung	111
4.1.3 Vorgemischter Betrieb mit Pilotierung.....	115
4.1.4 Vergleich der stationären Betriebszustände	117
4.1.5 Vergleich mit der Simulation	120
4.2 Instationärer Betrieb – phasenaufgelöste Messungen.....	126
4.2.1 Schwache Oszillationen ($\Phi = 0,71$).....	129
4.2.2 Starke Oszillationen ($\Phi = 0,83$).....	132
VI. Zusammenfassung	137
Literaturverzeichnis.....	141

I. Einleitung



"If you examine where the heat of a candle is, you will find it very curiously arranged. Suppose I take this candle, and hold a piece of paper close upon the flame, where is the heat of that flame? Do you not see that it is not in the inside? It is in a ring, exactly in the place where I told you the chemical action was..."

Scientific Papers. Vol. XXX. The Harvard Classics. New York: P.F. Collier & Son, 1909–14;
Bartleby.com, 2001. www.bartleby.com/30/ [Juli 2005].

Mit diesen Worten führte Mitte des 19. Jahrhunderts ein Wissenschaftler seinen Studenten ein Experiment vor, um ihnen zu zeigen wie die Verbrennung in einer Flamme abläuft. Als Anschauungsobjekt diente ihm zu dieser Zeit eine einfache Kerze und ein Blatt Papier. 1861 erschien schließlich das Buch zu seiner Zyklusvorlesung „*The Chemical History of a Candle*“.

Die Rede ist von Michael Faraday. 1791 in der Nähe von London als Sohn eines Schmieds geboren, wurde er nach einer Zeit als Laufbursche eines Buchbinders von Sir Humphry Davy als Laborassistent an der Royal Institution angeworben. Als dessen Begleiter lernte er auf seinen Reisen durch die Welt viele berühmte Wissenschaftler kennen. Nach seiner Rückkehr an die Royal Institution begann er seinen eigenen Teil zur Wissenschaft beizutragen und stieg rasch auf, bis er 1833 Professor für Chemie an der Royal Institution wurde. Mit großem Bemühen führte er seine Forschungen durch, die nicht nur zu seiner Zeit als großartige Glanzleistungen angesehen wurden und bis heute von Bedeutung sind. Ihm wurde der Vorsitz sowohl der Royal Society als auch der Royal Institution angeboten – er lehnte ab. Als er schließlich 1867 starb galt er unter seinen Zeitgenossen als einer der größten experimentellen Philosophen und als großartiger Forscher.



Michael Faraday
(1791-1867)

Die Methode Faradays, die Temperatur einer Flamme mit Hilfe eines Blattes Papier sichtbar zu machen, mag aus heutiger Sicht wenig wissenschaftlich wirken. Dennoch ist sie für die damalige Zeit so effektiv wie genial. Man muss diese Methode wohl zu den ersten „bild-

gebenden“ Verfahren in der Verbrennungsforschung zählen. Parallel entwickelte sich Mitte des 19. Jahrhunderts ein Forschungszweig der Chemie, der sich mit der fotografischen Aufnahme und der Entwicklung und Fixierung fotografischen Materials beschäftigte. Bis zur Einführung des ersten Kleinbildfilmes (Leica 1925) war es jedoch noch ein weiter Weg. Dennoch war dieser Weg auch grundlegend für weitere Zweige der wissenschaftlichen Forschung, für die Medizin und vor allem für die Verbrennungsforschung. Die rasche Entwicklung bildgebender Verfahren, sei es auf analogen Medien wie Film oder, mit Einführung der ersten elektronischen Aufnahmeeinheiten, in analoger oder gar digitaler Form, hat in vielen Bereichen das Wissen über physikalische oder chemische Prozesse bereichert. Die Entwicklung der Lasertechnik (seit 1960^a) brachte einen weiteren Fortschritt mit sich. Bisherige Detektionsmöglichkeiten beschränkten sich auf die Messung von Absorption oder die Detektion von Strahlungsemission. Da letztere integriert über das gesamte untersuchte Volumen in Blickrichtung aufgenommen wurde, waren orts aufgelöste Messungen nicht möglich. Erst die Anregung mittels Laserlicht erlaubte, das Detektionsvolumen auf das mit hoher Leistungsdichte bestrahlte Volumen räumlich zu begrenzen. Letztlich bot die Entwicklung lasergestützter spektroskopischer Verfahren die Möglichkeit auch die Zeitspanne der Detektion stark zu verkürzen.

In Grenzgebieten, wie der physikalischen Chemie, kommen viele Messverfahren zum Einsatz, die sich dieser Technik bedienen. Viele der gängigen Verfahren beschränken sich auf die Gewinnung von Messdaten aus einem punktförmigen Volumen. Zu diesen null-dimensionalen Messverfahren gehören z.B. die kohärente Anti-Stokes-Raman-Spektroskopie (CARS), Raman oder laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie (LIF), welche momentane Zustände oder zumindest zeitliche Verläufe im Probenvolumen wiedergeben. Andere Verfahren sind in der Lage, auch Daten entlang eindimensionaler (z.B. 1D-Raman-Spektroskopie) oder zweidimensionaler Volumina (z.B. abbildende laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie, 2D-LIF) zu liefern. Diese Verfahren bieten wichtige Einblicke in ablaufende Prozesse. Jedoch sind die Natur und unsere Umwelt, sowie die Prozesse, die in ihnen ablaufen, nicht auf nur ein oder zwei Dimensionen beschränkt. Vielmehr ist es die räumliche Information – die dritte Dimension, die unserem Verständnis ein Bild unserer wahren Umgebung vermittelt. Dies trifft ohne Einschränkung auch auf wissenschaftliche Messungen zu. So haben sich in den vergangenen Jahren Methoden entwickelt, die auf verschiedenste Weise dieses Problem zu lösen versuchen. In den meisten Fällen handelt es sich um Schicht- oder Schnittverfahren, die in meist

^a Erster Rubin-Laser, Mai 1960, entwickelt von Theodore Maiman und Nikolai Basov.

aufwändiger Weise dreidimensionale Information aus mehreren Schnittebenen errechnen. Diese Methodik lässt sich analog auf die Verbrennungsforschung übertragen und bildet auch die Grundlage dieser Arbeit.

Durch die Untersuchung von Speziesverteilungen in Flammen lassen sich Aussagen über ablaufende Prozesse bei der Verbrennung und die lokale Struktur der Flamme machen. Vor allem die Gradienten der Spezies dienen hier als Informationslieferanten. Im Falle des OH-Radikals, einem der Hauptreaktionsträger in der Verbrennung, lassen sich so z.B. anhand des steilsten Gradienten Informationen über den Ort der Hauptreaktionszone gewinnen. Die Untersuchung von Korrelationen dieser Gradienten mit anderen skalaren Größen, wie Temperatur und Spezieskonzentrationen am Bestimmungsort, ist besonders in Hinblick auf eine Anwendung in Simulationen von Bedeutung. Mit ihrer Hilfe lassen sich Simulationsansätze vereinfachen, sowie deren Ergebnisse validieren.

Die Untersuchung der Konzentrationsgradienten anhand von einzelnen Schnitten liefert jedoch nur eingeschränkt Informationen, da man nur Projektionen der realen Gradienten auf die Messebene erhält. Hier bietet die Anwendung eines 3D-Messverfahrens bessere Möglichkeiten und genauere Ergebnisse. Durch die geschickte Anordnung von zwei oder mehr Messebenen ist die Bestimmung des realen Gradienten orts aufgelöst möglich.

Die Thematik dieser Arbeit befasst sich in erster Linie mit der Bestimmung von OH-Konzentrationsgradienten. Sie dienen hier dazu, die lokale Struktur der Flamme zu untersuchen. Im ersten Teilprojekt dient die Bestimmung von dreidimensionalen Gradienten und deren Korrelationen mit anderen skalaren Größen in einer vorgemischten Erdgas/Luft-Flamme einerseits der Analyse der Konsequenzen, die sich aus einer 2D- bzw. 3D-Bestimmung ergeben, zum anderen der Ergänzung und Vereinfachung von Simulationen. Im Experiment wurde eine Anordnung von gekreuzten Messebenen zur Anregung von 2D-LIF mit 1D-Raman-Messungen kombiniert. Es wurden Korrelationen des OH-Konzentrationsgradienten mit der OH-Konzentration, sowie Beziehungen zwischen dem realen Gradienten (hier im Folgenden auch bezeichnet als 3D-Gradient) und den Projektionen des realen Gradienten auf die Messebenen (hier: 2D-Gradienten) untersucht.

Auch das zweite Projekt befasst sich mit der Bestimmung von Gradienten bzw. der Charakterisierung von Flammeneigenschaften. Mittels 2D-LIF von OH wurden hier stationäre, sowie oszillierende Flammen in einem Modellbrenner einer stationären Gasturbine unter turbinennahen Betriebsbedingungen untersucht. Bei den stationären Flammen diente die Bestimmung des steilsten Gradienten in der OH-Konzentrationsverteilung zur Lokalisierung der

Flammenfront. Aus der statistischen Auswertung ihrer örtlichen Aufenthaltswahrscheinlichkeit konnten die verschiedenen vorgemischten und nicht-vorgemischten Flammentypen verglichen werden. Bei den untersuchten instationären Flammen dienten phasenaufgelöste zweidimensionale OH-LIF-Verteilungen zur Analyse der Verbrennungsfluktuationen bei vorgemischten Flammen mit reduzierten Äquivalenzverhältnissen in Abhängigkeit vom Druckverlauf in der Brennervorkammer. Diese Fluktuationen haben einen entscheidenden Einfluss auf die Stabilität der Flamme und aufgrund der ungleichmäßigen Verbrennungsbedingungen auch auf den Schadstoffausstoß. Bei der Überlagerung mehrerer Störeinflüsse treten zudem starke thermoakustische Schwingungen auf, die sich in lautstarker Geräuschentwicklung und stark erhöhten Druckamplituden äußern. Dadurch kommt es zu einer erhöhten mechanischen Materialbeanspruchung des Aggregats. Die phasenaufgelösten LIF-Messungen sollen helfen, in Ergänzung zu weiteren Messungen, wie z.B. der Untersuchung der Strömungsverhältnisse in der Brennkammer, die Wirkmechanismen der Instabilitäten zu analysieren und sowohl Rahmendaten zur Verbesserung von Simulationsansätzen, wie auch zur Verbesserung der Verbrennungssteuerung zu liefern.

Die beiden Themenbereiche der Arbeit werden in separaten Kapiteln abgehandelt und durch Grundlagen und Hintergrundinformationen ergänzt. Diese Arbeit ist dazu wie folgt in Kapitel untergliedert:

Kapitel II befasst sich mit allgemeinen Grundlagen der Verbrennungsforschung und der Laserspektroskopie. In Kapitel III werden unter anderem verschiedene Messmethoden präsentiert, die bereits an unterschiedlichen Objekten in der Verbrennungsforschung angewendet wurden und an denen sich das in Kapitel IV beschriebene Experiment zur Bestimmung von 3D-Gradienten orientiert bzw. aus denen es sich entwickelt hat. Kapitel V befasst sich schließlich mit den Untersuchungen am Gasturbinenbrenner zur vergleichenden Analyse der verschiedenen stationären Betriebsmodi und der Untersuchung der Verbrennungsfluktuationen.

II. Theoretische Grundlagen

1 Einführung und Grundbegriffe

Die folgenden Abschnitte geben einen Überblick und liefern einige Hintergrundinformationen, die für das Verständnis der in dieser Arbeit beschriebenen Experimente und Ergebnisse hilfreich sein sollen. Sie sollen helfen, etwas an Grundwissen zu vermitteln, welches für das grobe Verständnis von Flammen, sowie von Verbrennungs- und Laserdiagnostik nützlich ist. Für detaillierte Information sei auf gängige Literatur zu Verbrennung [1, 2], Spektroskopie [3-5] und Laserdiagnostik im Speziellen [6-9] verwiesen.

1.1 Verbrennung und Flammen

1.1.1 Vorgemischte und nicht-vorgemischte Flammen

Bei der Verbrennung gasförmiger Brennstoffe unterscheidet man prinzipiell zwischen zwei Typen von Flammen: Vorgemischte und nicht-vorgemischte Flammen. Die Flammenstruktur kann dabei bei beiden sowohl laminar als auch turbulent sein. Die Charakterisierung vorgemischter Flammen wird über das Mischungsverhältnis von Brennstoff und Oxidator, sowie über die Strömung getroffen. Die Mischung von Brennstoff und Oxidator findet dabei außerhalb der eigentlichen Reaktionszone statt. Der entscheidende Vorteil dieser vorgemischten Flammen liegt in der leichten Einstellbarkeit des Brennstoff/Luft-Verhältnisses. Dagegen wirkt sich allerdings deutlich nachteilig aus, dass es bei Flammengeschwindigkeiten, die größer als die Ausströmgeschwindigkeit sind, durchaus zu einem Flammenrückschlagen kommen kann, was eine erhöhte Explosionsgefahr mit sich bringt. Im Gegensatz dazu entsteht bei nicht-vorgemischten Flammen das brennfähige Gemisch erst im Verbrennungsraum durch Zusammenführen von Brennstoff und Verbrennungsluft. Eine Gefährdung durch Flammenrückschlag kann so vermieden werden. Aus diesem Grund finden in technischen Anwendungen oft nicht-vorgemischte Flammen ihre Verwendung. Bei industriellen Verbrennungsanlagen wird das Brenngemisch aus Gas und Verbrennungsluft dazu im Verbrennungsraum z.B. durch Verdrallung an einem Ausströmgerüst möglichst rasch gemischt.

Ort und Form der Verbrennungszone wird dabei durch Strömungs- und Diffusionsprozesse bestimmt. Ein Beispiel für den Fall eines laminaren Brenners mit ausgeprägter Trennung von Brennstoff und Oxidator ist z.B. der Gegenstrom-Diffusionsbrenner [10, 11].

1.1.2 Zeitskalen

Die an der Verbrennung beteiligten verschiedenen chemischen und physikalischen Prozesse laufen in zeitlichen Größenordnungen ab, die einen Bereich von mehreren Potenzen überdecken. Eine Übersicht über relevante Zeitskalen, in denen Teilprozesse der Verbrennung ablaufen, sind in Abb. II.1 dargestellt [1].

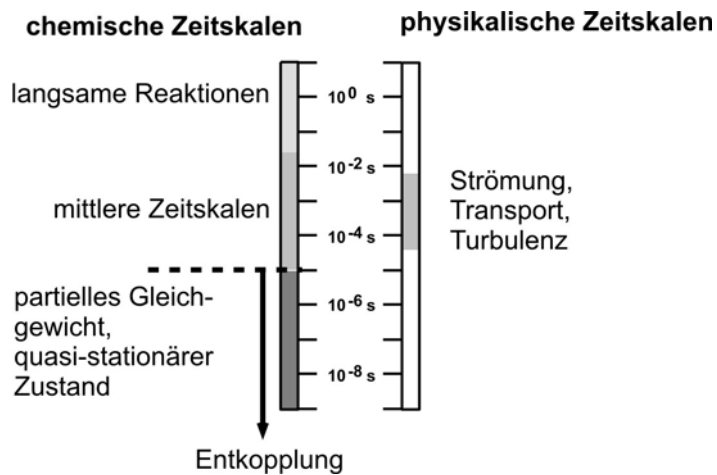


Abb. II.1: Überblick über chemische und physikalische Zeitskalen [1].

Chemische Reaktionen laufen je nach Mechanismus typischerweise in einem weiten Bereich zwischen 10^{-10} s und mehr als 1 Sekunde ab. Physikalische Prozesse, zu denen Strömung, Transport und Turbulenz gehören, laufen dagegen in einem relativ kleinen Zeitintervall zwischen 100 μ s und 10 ms ab. Schnelle chemische Prozesse, wie Reaktionen in partiellen Gleichgewichten oder Spezies in quasistationären Zuständen, entsprechen Gleichgewichtseinstellungen und lassen sich so von den anderen Prozessen entkoppeln. Dies bedeutet eine Vereinfachung, die bei der Modellierung reaktiver Strömungen ein wichtiges Kriterium darstellt.

1.1.3 Adiabatischer Grenzfall

Eine Verbrennungssituation, bei der alle chemischen Reaktionen abgeschlossen sind und die vollständige freigewordene Energie zum Aufheizen des Systems benutzt wurde, wird als adiabatischer Grenzfall bezeichnet. Die freigewordene Energie wurde dabei unter Ausschluss von Strahlungsverlusten vollständig in thermische Energie umgesetzt. Für eine stöchiometrisch gemischte Methan/Luft-Flamme beträgt die adiabatische Flammentemperatur beispielsweise ca. 2200 K [1].

1.2 Diffusions- und Turbulenzphänomene

1.2.1 Diffusion, laminarer Fall

Das 1. Fick'sche Gesetz stellt einen empirischen Ansatz dar, mit dessen Hilfe Austauschprozesse bezüglich Impuls-, Wärme- und Stofftransport quantitativ beschrieben werden können [12]:

$$\vec{\varphi} = -\text{konst} \vec{\nabla} k(x, y, z) \quad (II.1)$$

Das Modell beschreibt die direkte Proportionalität zwischen der Flussdichte $\vec{\varphi}$ und dem Gradienten der Konzentration $k(x, y, z)$, einer skalaren oder vektoriellen Größe. Das Zustandekommen eines Flusses erklärt sich also aus dem Bestreben der Diffusion, ein Konzentrationsgefälle durch Transportphänomene in eine Gleichverteilung umzuwandeln. Im Einzelnen werden die Phänomene von Impuls-, Wärme- und Stofftransport durch die folgenden Gleichungen (II.2-II.4) beschrieben:

• Impulsaustausch:
$$\hat{T} = -\nu \vec{\nabla} \otimes \vec{p} \quad (II.2)$$

\hat{T} = Schubspannungstensor

ν = kinetische Zähigkeit

\vec{p} = Impuls

• Wärmeaustausch:
$$\vec{H} = -l \vec{\nabla} T \quad (II.3)$$

\vec{H} = Wärmeflussdichte

l = Wärmeleitzahl

T = Temperatur

• Stoffaustausch:
$$\vec{j} = -D \vec{\nabla} c \quad (II.4)$$

\vec{j} = Stoffflussdichte

D = Stoffdiffusionskoeffizient

c = Stoffkonzentration

1.2.2 Laminare Strömung

Eine laminare Strömung liegt vor, wenn die Trägheitskräfte nicht wesentlich größer als die Viskositätskräfte sind. In einer makroskopischen Betrachtung liegt eine Strömungsbewegung in parallelen Schichten vor. Mikroskopisch betrachtet findet jedoch ein Impulsaustausch zwischen den Schichten statt, der die Ursache für die innere Reibung ist [13].

1.2.3 Turbulenz

Bei einer zeitlich und räumlich instationären, zufällig wirkenden Strömungs- und Bewegungsform spricht man von Turbulenz. Diese stellt sich ein, wenn Massenträgheitseffekte nicht mehr durch die molekulare Viskosität des in Bewegung versetzten Mediums gedämpft werden können. Die Trägheitskräfte übertreffen dabei die Viskositätskräfte bei weitem [12].

1.2.4 Reynolds-Zahl

Die turbulente Reynolds-Zahl Re_t (nicht zu verwechseln mit der geometrieabhängigen Reynolds-Zahl aus der Strömungsmechanik) dient als formales Kriterium bei der Einschätzung, ob die viskosen Reibungskräfte die turbulenten Bewegungen zu dämpfen vermögen oder nicht. Sie ist definiert als Quotient aus Massenkraft und viskoser Kraft und enthält nur Größen des Strömungsfeldes:

$$Re_t = \frac{\rho u^2 / l}{\nu \rho u / l^2} = \frac{u l}{\nu} \quad (II.5)$$

u stellt hier eine typische Strömungsgeschwindigkeit dar. l ist eine charakteristische Länge des Systems und ν die Viskosität des Mediums. Für niedrige Werte der systemabhängigen Reynolds-Zahl gilt die Strömung als laminar. Im sich anschließenden Übergangsbereich lässt sich der Zustand der Strömung nicht eindeutig festlegen. Bei größeren Werten in der Größenordnung von tausend bis einigen tausend geht die Strömung in den turbulenten Bereich über [12].

1.2.5 Turbulente Diffusion

Bei der turbulenten Diffusion lassen sich der Impuls-, Wärme- und Stoffaustausch nicht mehr wie bei der laminaren Strömung durch skalare Größen wie die kinetische Zähigkeit ν , Wärmeleitfähigkeit l und den Diffusionskoeffizienten D beschreiben, sondern sie werden von den turbulenten Feldgrößen für Impuls (ν_t), Wärme (l_t), und Stoff (D_t) bestimmt. Sie sind aufgrund ihrer Abhängigkeit von den Randbedingungen des Strömungsfeldes von Ort zu Ort verschieden. Dabei sind die turbulenten Austauschgrößen etwa um Faktor 1000 größer als im laminaren Fall.

1.2.6 Flamelet-Regime

Bei der Modellierung von turbulenten Flammen findet sehr häufig der Ansatz des Flamelet-Modells Anwendung. In turbulenten Flammen, die in dieses Regime fallen, lässt sich die gefaltete Flammenoberfläche als eine aus planaren Flammenelementen (Flamelets) zusammengesetzte Oberfläche betrachten [14]. Sie haben die interne Struktur einer eindimensionalen Flamme und bewegen sich mit einer Geschwindigkeit, die von der mechanischen Dehngeschwindigkeit des lokalen Mediums und der lokalen Oberflächenfaltung abhängt.

Der Flamelet-Ansatz kann als eine Erweiterung des „flame sheet“-Modells angesehen werden, welches von einer unendlich schnellen chemischen Reaktion ausgeht, so dass die Reaktionszone als eine unendlich dünne Grenzfläche beschrieben werden kann. Unter der Annahme eines einheitlichen Diffusionsvermögens bei Verbrennung unter konstantem Druck und ohne Wärmeverluste werden die thermochemischen Eigenschaften vollständig vom lokalen Mischungszustand bestimmt, welcher durch den Mischungsbruch beschrieben wird. Der

Flamelet-Ansatz erleichtert die Annahme einer unendlich schnellen Chemie durch die Einführung der skalaren Dissipationsrate χ als einen Parameter, welcher den Grad der Abweichung vom Gleichgewichtszustand beschreibt. Er hat die Dimension $[s^{-1}]$ und kann auch als Kehrwert der charakteristischen Zeit der Diffusion oder der Verweilzeit aufgefasst werden.

Dennoch stützt sich der Flamelet-Ansatz noch immer auf die Annahme, dass die Zeitskalen der chemischen Kinetik weitaus kürzer sind, als die Zeitskalen von Konvektion und Diffusion. Unter dieser Bedingung weit auseinander liegender Zeitskalen erreicht die Flammenchemie einen quasi-stationären Zustand und passt sich sofort den lokalen Strömungsbedingungen an. Der Einsatz des Flamelet-Modells in der Modellierung turbulenter Verbrennung wird von Peters et al. [15] ausgiebig diskutiert. Peters et al. konnten zeigen, dass im quasi-stationären Zustand, unter bestimmten Annahmen, Temperatur und Spezies durch das Gleichgewicht zwischen Diffusion und chemischer Reaktion bestimmt werden. Dieses Wissen wurde zum Aufbau einer Flamelet-Bibliothek verwendet, in welcher thermochemische Eigenschaften als Funktionen von Mischungsbruch und skalarer Dissipationsrate ausgedrückt werden. Nimmt die skalare Dissipationsrate χ einen Wert von 0 an, so befindet sich das Gasgemisch im Gleichgewichtszustand.

1.3 Verbrennungsrelevante Spezies – Hydroxyl-Radikal (OH)

1.3.1 Bedeutung von OH in Verbrennungsprozessen

Die Kenntnisse über Radikalkonzentrationen können Aufschluss über verbrennungsrelevante Effekte geben, die nicht über skalare Erhaltungsgrößen, wie z.B. den Mischungsbruch ξ , vorhergesagt werden können. Dazu eignet sich besonders das Hydroxyl-Radikal (OH), da es an vielen Hauptreaktionen des Verbrennungsprozesses beteiligt ist, dadurch oft in messtechnisch gut nachzuweisenden Konzentrationen vorliegt und zudem spektroskopisch leicht zugänglich ist (s. Kap. II.2.6).

OH entsteht neben vielen weiteren Radikalen als intermediäre Spezies bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen. Es wird erst bei relativ hohen Temperaturen ab ca. 1600 K gebildet. Das OH-Radikal ist an den ersten Reaktionsschritten, die bereits vor der Hauptreaktionszone ablaufen, beteiligt. Zu diesen gehört unter anderem der Abbau von Methan (CH_4) aus dem Frischgas zum Methyl-Radikal (CH_3). Abb. II.2 zeigt die Abhängigkeit der OH-Konzentration

von der Temperatur in einer laminaren Vormischflamme mit Brennstoff/Luft-Verhältnis $\Phi = 0,66$ ($\lambda = 1,5$) ohne Streckung, die sich aus einer laminaren Rechnung ergibt [16].

In der Voroxidationszone, in der Temperaturen von ca. 1200 K herrschen, finden sich noch keine OH-Radikale. In der sich anschließenden Hauptreaktionszone laufen die Reaktionen ab bei denen OH-Radikale gebildet werden bzw. an denen sie beteiligt sind. Hier findet man Temperaturen ab etwa 1600 K. Da die OH-Radikale damit hauptsächlich nahe der Hauptreaktionszone vorzufinden sind, eignen sie sich bedingt als Marker für die Flammenfront und deren turbulenzbedingte Deformation (s. dazu auch speziell Kap. V.1).

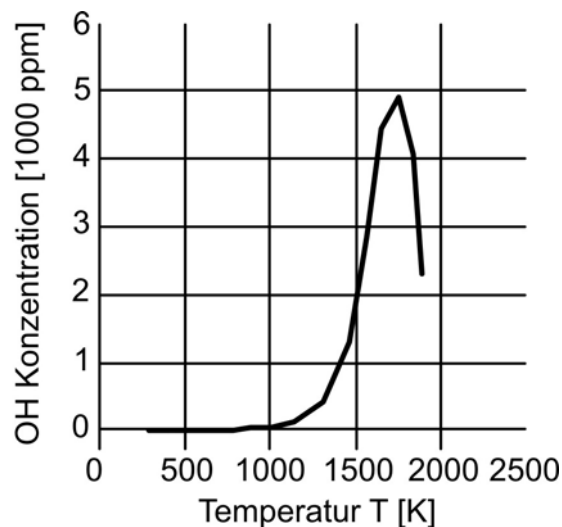
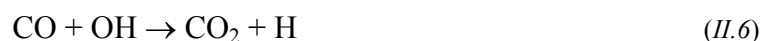


Abb. II.2: Berechnete Korrelationsfunktion zwischen Temperatur und OH-Konzentration einer laminaren Vormischflamme [16].

Es findet auch eine Diffusion in kältere Zonen statt, wobei dieser Effekt bei zunehmender Turbulenz weiter begünstigt wird und besonders bei hohen Turbulenzgraden zu großen Abweichungen von der Temperatur-OH-Korrelation führen kann. Mit leicht steigenden Temperaturen schließt sich an die Hauptreaktionszone eine relativ breite Nachoxidationszone an. Hier nimmt die Konzentration der OH-Radikale durch langsamere Folgereaktionen wie die in der Reaktion (II.6) wieder ab.



1.3.2 Bildung und Reaktionen des OH-Radikals

Das OH-Radikal spielt eine wichtige Rolle als Reaktionskettenträger bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen [17]. Daneben treten als weitere Reaktionskettenträger O- und H-Radikale auf, die aus schnellen Zweierstoß-Reaktionen gebildet werden [18, 19].

Zu diesen schnellen Reaktionen zählen

- die Kettenverzweigungsreaktionen



- und die Kettenfortpflanzungsreaktionen



Bei ersteren werden mehr Radikale erzeugt als verbraucht werden, wohingegen bei den letzteren die Zahl der Radikale unverändert bleibt.

Eine Reduzierung des Radikalbestandes ergibt sich durch Kettenabbruchreaktionen, bei denen zwei Radikale häufig unter Beteiligung eines inerten Stoßpartners M einen reaktiven Stoß ausüben. Dabei entsteht ein nicht-radikalisches Produkt, das seine überschüssige Energie an den inerten Stoßpartner abführt. Aufgrund der geringen Wahrscheinlichkeit dieses Dreierstoßes laufen diese Abbruchreaktionen langsam und stark druckabhängig ab. Eine weitere Möglichkeit des Radikalabbaus sind Wandstöße, bei denen als inerte dritter Stoßpartner eine Oberfläche fungiert. Maximale Konzentrationen von Radikalen finden sich in Mischungsbereichen nahe der stöchiometrischen Mischung, wo die Temperaturen am höchsten sind. Laut der Vorhersage durch das Flamelet-Modell findet sich OH in einem engen Bereich auf der mageren Seite der stöchiometrischen Mischung [19]. Radikale wie H und CH₃ liegen hauptsächlich auf der fetten Seite, O dagegen mehr auf der mageren Seite vor.

1.3.3 Einflüsse der Turbulenz auf die OH-Radikal-Chemie

Das OH-Radikal ist bei seinen Reaktionen sowohl an schnellen Zweierstoßreaktionen, wie auch an langsamen Dreierstoßreaktionen beteiligt. Typische Zeitskalen der schnellen Zweierstoßreaktionen (Kettenverzweigung, Kettenfortpflanzung) liegen im Bereich von einigen Mikrosekunden (10^{-6} s), die der langsamen Dreierstoßreaktionen (Rekombination) dagegen

etwa im Bereich von wenigen Millisekunden (10^{-3} s). Die beiden Zeitskalen liegen also bei atmosphärischen Flammen etwa um drei Größenordnungen auseinander. Daraus ergibt sich eine relativ dünne OH-Reaktionszone für die Zweierstoßreaktion und eine weiter verteilte Reaktionszone der Dreierstoß-Rekombinationsreaktionen [20]. Durch die unterschiedlichen Reaktionszeitskalen werden OH-Konzentrationen ermöglicht, die über dem Gleichgewichtswert liegen (Superequilibrium). In besonderem Maße, wenn die Dreierstoßreaktionen langsam gegenüber der turbulenten Zeitskala werden.

Werden die Kettenverzweigungs- und Kettenfortpflanzungsreaktionen durch Turbulenzeinflüsse gestört, so tritt lokale Verlöschung ein. Hier wird die Flammenfront durch kleinste Turbulenzelemente gestreckt und die Flammenfrontdicke nimmt ab. Als Folge sinkt auch die Wärmefreisetzung relativ zu den Wärmeverlusten durch Konvektion und Diffusion. Damit nimmt aber auch die Temperatur in diesem Bereich ab, und unterhalb eines gewissen Minimalwertes von Temperatur und Radikalkonzentration kommt es zum Verlöschen der Flamme [20].

2 Laserspektroskopie

2.1 Energiezustände und Nomenklatur

Die Spektrallinien in der Molekülspektroskopie entstehen durch die Absorption oder Emission eines Photons, die mit einer Änderung der Energie eines Moleküls verbunden ist. Im Unterschied zu Atomen hat ein Molekül viele Möglichkeiten, seine Energie zu verändern: Die gesamte Anregungsenergie $E_{\text{ges}}(e, \nu, J)$ eines mehratomigen Moleküls ergibt sich daher aus der Summe der elektronischen Energiezustände $E_{\text{el}}(e)$, der Schwingungsenergiezustände $E_{\text{vib}}(\nu)$ und der Rotationsenergiezustände $E_{\text{rot}}(J)$:

$$E_{\text{ges}}(e, \nu, J) = E_{\text{el}}(e) + E_{\text{vib}}(\nu) + E_{\text{rot}}(J) \quad (\text{II.12})$$

Der elektronische Grundzustand wird mit $e = 0$, die angeregten Zustände mit $e = 1, 2, \dots$ bezeichnet. Die Quantenzahlen ν und J stehen entsprechend für die Schwingungs- und Rotationszustände. Die Energie eines energetischen Zustandes wird gewöhnlich in Wellenzahlen $\tilde{\nu}$ mit der Einheit $[\text{cm}^{-1}]$ angegeben:

$$E = hc\tilde{\nu} \quad (II.13)$$

Die Wellenzahl $\tilde{\nu}$ ergibt sich als Reziproke aus der Wellenlänge ($\tilde{\nu} = \lambda^{-1}$). Ferner sind die Planck'sche Konstante h und die Lichtgeschwindigkeit c enthalten. Die Energie des elektronischen Grundzustandes ist per Definition Null. Elektronische Übergänge werden durch die Schreibweise wie z.B. $A-X$ gekennzeichnet, wobei hier X für den Grundzustand und A für den ersten elektronisch angeregten Zustand stehen. Nicht näher bestimmte Übergänge werden mit der Schreibweise $\tilde{A}-\tilde{X}$ gekennzeichnet.

Die harmonische Näherung eines Oszillators ist für hochangeregte Moleküle nicht mehr gültig. Man spricht in diesem Falle von einer anharmonischen Bewegung, die nicht mehr vereinfacht durch eine Parabel beschrieben werden kann. Die rücktreibende Kraft ist nicht mehr proportional zur Auslenkung aus der Ruhelage und die tatsächliche Potentialkurve öffnet sich bei hohen Energien weiter als die Parabel des harmonischen Oszillators. Es ist daher zu erwarten, dass die Zustände für hohe Quantenzahlen ν näher zusammenrücken und gegen einen endlichen Wert D_0 , die Dissoziationsenergie, streben. Der Schwingungszustand eines Moleküls lässt sich dann folgendermaßen beschreiben [3, 4]:

$$E_{\text{vib}}(\nu) = hc(\omega_e(\nu + \frac{1}{2}) - \omega_e x_e(\nu + \frac{1}{2})^2 + \dots) \quad (II.14)$$

ω_e ist die Kreisfrequenz des harmonischen Oszillators, $\omega_e x_e$ die des anharmonischen Oszillators mit der Anharmonizitätskonstante x_e , die beide vom elektronischen Zustand des Moleküls abhängen [21]. ν steht hier für die Schwingungsquantenzahl. Der an einem Übergang beteiligte tiefer liegende Schwingungszustand wird in der Regel mit ν'' , der höher gelegene mit ν' bezeichnet.

Die Energie der Rotationszustände $E_{\text{rot}}(J)$ ergibt sich nach der Theorie des linearen Kreisels in folgender Weise [3]:

$$E_{\text{rot}}(J) = hcB_v J(J+1) \quad (II.15)$$

Die Abstände der Rotationsenergieniveaus sind nicht äquidistant. Die Rotationskonstante B_v ist abhängig vom Schwingungszustand des Moleküls. J stellt die Rotationsquantenzahl dar.

Dieser Ansatz lässt sich auf lineare Moleküle wie OH anwenden, da seine Atome als punktförmig angesehen werden dürfen und es nur zwei entartete Rotationsfreiheitsgrade senkrecht zur Molekülachse besitzt, weil das Trägheitsmoment bezüglich der Molekülachse Null ist.

Betrachtet man die Zentrifugalkräfte, die auf die Atome eines sich drehenden Moleküles wirken, stellt man fest, dass sich die Trägheitsmomente aufgrund der Verzerrung der Geometrie des Moleküls verändern können. Mit zunehmender Rotation wird die Bindung zwischen den Atomen gedehnt und als Folge daraus wird auch das Trägheitsmoment größer. Die Rotationskonstante wird dadurch verkleinert und die Energieniveaus rücken im Vergleich zum starren Rotator etwas zusammen. Man kann diesen Effekt berücksichtigen, indem man einen zusätzlichen Energieterm einfügt:

$$E_{\text{rot}}(J) = hc \left(B_v J(J+1) - D_v J^2 (J+1)^2 + \dots \right) \quad (II.16)$$

D_v beschreibt die Zentrifugaldehnungskonstante. Analog zu oben wird auch hier für den tiefer liegenden Zustand J'' , für den höher liegenden Zustand J' verwendet. Der Betrag des Drehimpulsvektors J bestimmt die Rotationsenergie. Durch die verschiedenen Orientierungen, die er bezüglich der Molekülachse einnehmen kann, besitzt jeder Rotationszustand einen Entartungsgrad g_{rot} :

$$g_{\text{rot}} = 2J + 1 \quad (II.17)$$

2.2 Boltzmann-Statistik

Die Kenntnis über Besetzungsverteilungen von elektronischen, Schwingungs- und Rotationszuständen ist in der Spektroskopie von entscheidender Bedeutung, denn die Niveaus sind im thermischen Gleichgewicht nach statistischen Regeln besetzt.

Die Besetzung $N(E)$ eines Niveaus mit der Energie E ist für eine bestimmte Temperatur durch die Boltzmann-Verteilung gegeben:

$$N(E) = N g e^{-\frac{E}{k_B T}} \quad (II.18)$$

Der Entartungsgrad g eines Niveaus der Energie E gibt die Anzahl der möglichen Zustände an, die zu dieser Energie gehören. k_B ist die Boltzmann-Konstante.

Der Bruchteil von Molekülen, die sich in einem bestimmten elektronischen, vibronischen oder rotatorischen Zustand befinden, wird durch den Boltzmann-Faktor angegeben. Der Boltzmann-Faktor f_B besteht folglich aus drei Komponenten [3]:

$$f_B = f_B^{\text{el}} f_B^{\text{vib}} f_B^{\text{rot}} \quad (\text{II.19})$$

Durch die Zusammensetzung des Boltzmann-Faktors als Produkt der Faktoren der einzelnen Beiträge, lassen sich die Faktoren für den elektronischen f_B^{el} , den vibronischen f_B^{vib} und den Beitrag der Rotation f_B^{rot} getrennt betrachten.

- Verteilung über die elektronischen Zustände:

$$f_B^{\text{el}} = \frac{g}{Z_{\text{el}}(T)} e^{-\frac{E_{\text{el}}}{k_B T}} \quad (\text{II.20})$$

Z_{el} steht für die Zustandssumme der elektronischen Zustände. Die Energie E_{el} ist jedoch so hoch, dass sogar bei den hohen Temperaturen in Flammen der Anteil der Moleküle im ersten angeregten Zustand vernachlässigbar ist. Typische Energien von elektronischen Übergängen betragen einige Elektronenvolt ($1 \text{ eV} \approx 8\,065 \text{ cm}^{-1}$ oder 96 kJ mol^{-1}). Die an solchen Übergängen beteiligten Photonen besitzen somit Wellenzahlen im sichtbaren oder ultravioletten Bereich ($14\,000 - 50\,000 \text{ cm}^{-1}$). Die thermische Anregung eines elektronischen Niveaus ist daher sehr unwahrscheinlich. Bei einer verbrennungstypischen Temperatur von 2000 K und einem Abstand der Niveaus von ca. $32\,500 \text{ cm}^{-1}$ (308 nm , OH $A-X(0,0)$) beträgt der Boltzmann-Faktor des oberen Niveaus nur etwa $e^{-\hbar\omega/k_B T} \approx 1 \times 10^{-9}$ [22, 23]:

- Verteilung über die Schwingungszustände:

$$f_B^{\text{vib}} = \frac{1}{Z_{\text{vib}}(T)} e^{-\frac{E_{\text{vib}}}{k_B T}} \quad (\text{II.21})$$

Die Energieaufspaltung der Schwingungs-Energiezustände ist wesentlich kleiner als die der elektronischen Zustände. Die Energieabstände betragen im Fall von OH um 0,43 eV (ca. $3\,500\text{ cm}^{-1}$). Folglich werden bei höheren Temperaturen auch Niveaus über dem Grundzustand stärker besetzt werden. Bei Raumtemperatur (298 K) ist in erster Linie das unterste Schwingungsniveau besetzt, während bei den höheren Temperaturen in Flammen (ca. 2000 K) bereits eine deutliche Besetzung des ersten angeregten Niveaus ($\nu = 1$) stattfindet.

- Verteilung über die Rotationszustände:

$$f_{\text{B}}^{\text{rot}} = \frac{2J+1}{Z_{\text{rot}}(T)} e^{-\frac{E_{\text{rot}}}{k_{\text{B}}T}} \quad (\text{II.22})$$

Durch die Entartung der Rotationszustände geht in den Boltzmann-Faktor für die Rotationszustände der Entartungsfaktor $g = 2J + 1$ mit ein. Die Abstände der Rotationsniveaus sind im Vergleich noch deutlich geringer als die der Schwingung (etwa 1 cm^{-1} , mit steigender Größe des Moleküls geringer werdend). Deshalb befindet sich bereits bei Raumtemperatur ein erheblicher Teil der Moleküle in angeregten Rotationsenergieniveaus. Bedingt durch die mit der Anregung zunehmende Entartung existiert ein Maximum in der Verteilung.

2.3 Rotations-Schwingungs-Spektren zweiatomiger Moleküle

Bei Wechselwirkung von Molekülen mit (einzelnen) Photonen, z.B. infolge eines Absorptionsvorganges, sind reine Schwingungsübergänge abhängig von einer Änderung des elektrischen Dipolmomentes während der Schwingung. Homonukleare Moleküle wie N_2 oder O_2 sind wegen ihres konstanten elektrischen Dipolmomentes während einer Streckschwingung IR-inaktiv. Für Schwingungsübergänge heteronuklearer Moleküle wie OH gilt die Auswahlregel:

$$\Delta\nu = \pm 1 \quad (\text{II.23})$$

Die Energien erlaubter Übergänge ergeben sich mit der harmonischen Näherung aus:

$$\Delta E = E_{\nu+1} - E_{\nu} = \hbar\omega \quad \text{für } \nu+1 \leftarrow \nu \quad (\text{II.24})$$

Bei elektronisch-vibronischen Übergängen kann sich die Schwingungsquantenzahl ν beliebig ändern, da die Intensität solcher Übergänge durch die Übergangs-Matrixelemente und die elektronischen Auswahlregeln bestimmt wird. Übergangswahrscheinlichkeiten können mit Hilfe des Franck-Condon-Prinzips über die daraus abgeleiteten Franck-Condon-Faktoren bestimmt werden und somit Aussagen über Intensitäten im Spektrum gemacht werden [5]:

Im Schwingungsspektrum eines heteronuklearen zweiatomigen Moleküls findet sich ferner eine große Anzahl eng benachbarter Rotationsübergänge, was durch die oben angestellten Einzelbetrachtungen der Energieverhältnisse der verschiedenen Übergänge verständlich wird. Durch die geringen Abstände der Rotationslinien (typische Abstände ca. 1 cm^{-1}) zeigen Moleküle charakteristische Bandenspektren. Da Schwingungs- und Rotationsübergänge gleichzeitig stattfinden, muss sich die Rotationsquantenzahl J bei einem Schwingungsübergang um $\Delta J = \pm 1$ ändern, sofern das Molekül keine Drehimpulskomponente um seine Molekülachse besitzt. Ist dies jedoch der Fall, so sind auch Übergänge mit $\Delta J = 0$ erlaubt.

Eine formale Beschreibung eines Rotations-Schwingungs-Spektrums ergibt sich aus der Summe der harmonischen Komponenten der Schwingungs- und Rotationszustände E_{vib} und E_{rot} :

$$E_{\nu, J} = E_{\text{vib}}(\nu) + E_{\text{rot}}(J) = \left(\nu + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega + hcB \cdot J(J+1) \quad (\text{II.25})$$

Durch die Änderung der Rotationsquantenzahl J während eines Schwingungsübergangs $\nu+1 \leftarrow \nu$ bilden sich im Spektrum charakteristische Zweige als Ansammlung von Absorptions- bzw. Emissionslinien aus.

Während zweiatomige Moleküle die beschriebenen Linienspektren aufweisen, kommt es bei größeren Molekülen zu einer Überlappung der Übergänge und man findet keine diskreten Linien mehr, sondern ein charakteristisches Bandenspektrum.

2.4 Laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie

Die laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie (LIF) ist ein Verfahren für den Nachweis von Atomen und Molekülen, welches aufgrund seiner Selektivität und hohen Empfindlichkeit seine Anwendung in der Untersuchung von Verbrennungssystemen und in der Bestimmung von Reaktionsgeschwindigkeiten in Verbrennungsprozessen gefunden hat [6, 9, 24, 25]. Die hohe Empfindlichkeit erlaubt Messungen bis in den sub-ppm Bereich und eignet sich daher hervorragend für quantitative mehrdimensionale Messungen und den Nachweis reaktiver

intermediärer Spezies wie OH, H, O, CH oder NH, welche unter den Bedingungen in einer Flamme nur in sehr geringen Konzentrationen vorliegen [26].

Die Anregung bestimmter Übergänge findet durch die Wahl geeigneter Wellenlängen statt, die für die verbrennungsrelevanten Spezies im UV und im sichtbaren Bereich liegen. Zur linien-selektiven Anregung finden schmalbandige Lasersysteme ihre Anwendung.

Das Verfahren beruht auf der spontanen Emission von Fluoreszenzstrahlung durch Atome und Moleküle nach einer vorherigen resonanten Absorption von Photonen einer geeigneten Übergangswellenlänge aus dem elektrischen Strahlungsfeld des Lasers.

Für die LIF-Spektroskopie gibt es zwei mögliche Detektionsverfahren. Die Methode lässt sich zum einen als LIF-Anregungsspektroskopie betreiben, indem die anregende Laserfrequenz über den gesamten interessierenden spektralen Absorptionsbereich durchgestimmt wird und die Fluoreszenzintensität bei festgehaltener Detektionsfrequenz gemessen wird. Alternativ bietet sich die LIF-Emissions- oder Fluoreszenzspektroskopie an, bei der die anregende Laserwellenlänge fest auf einen ausgesuchten Übergang eingestellt wird und die vom angeregten Zustand emittierte Fluoreszenz hinter einem Spektrographen gemessen wird. Die auftretende Fluoreszenz, welche durch Relaxation in niedrigere Niveaus hervorgerufen wird, gehorcht den quantenmechanischen Auswahlregeln. Wegen der selektiven Bevölkung eines ausgewählten Niveaus ist ein Fluoreszenzspektrum meist einfacher aufgebaut als das einer simultanen Anregung verschiedener Niveaus, bei dem sich die einzelnen Spektren überlagern. Mittels schmalbandiger Filter lassen sich bestimmte Teile des Emissionsspektrums selektieren. Voraussetzung ist jedoch, dass benachbarte Absorptionslinien nicht innerhalb ihrer Linienbreite überlappen [7].

Die in dieser Arbeit angewendete Methode beruht im Grunde auf einer Kombination dieser beiden Detektionsverfahren. Es wird sowohl eine definierte Anregungswellenlänge ausgewählt als auch die Detektionswellenlänge durch Verwendung von Filtern selektiert. Für dieses Verfahren des LIF-Imagings betrachtet man die ortsabhängigen LIF-Intensitäten und erhält eine zweidimensionale Darstellung der Spezies-Vorkommen (vgl. Kap. III.1).

2.5 Zwei-Niveau-Modell der Fluoreszenz

Voraussetzung für das Zwei-Niveau-Modell ist ein System aus identischen Teilchen mit zwei unterschiedlichen Energieniveaus, von denen das energetisch höher liegende Niveau den angeregten Zustand und das energetisch tiefer liegende den Grundzustand des Teilchens beschreibt. Als weitere Voraussetzung muss sich das System im thermischen Gleichgewicht

befinden, denn für diese Bedingung ist die Besetzung der einzelnen Energieniveaus nach der Boltzmann-Statistik verteilt.

Ein Molekül, welches im Grundzustand vorliegt, kann nun durch ein angelegtes äußeres elektromagnetisches Feld, z.B. durch Laserlicht, angeregt werden, indem es ein Photon aus dem elektromagnetischen Feld absorbiert und in den angeregten Zustand übergeht. Dieser Prozess (B_{12}) wird als induzierte Absorption bezeichnet. Dazu muss die Energie des anregenden Photons genau der Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen entsprechen ($h\nu = \Delta E$) [6].

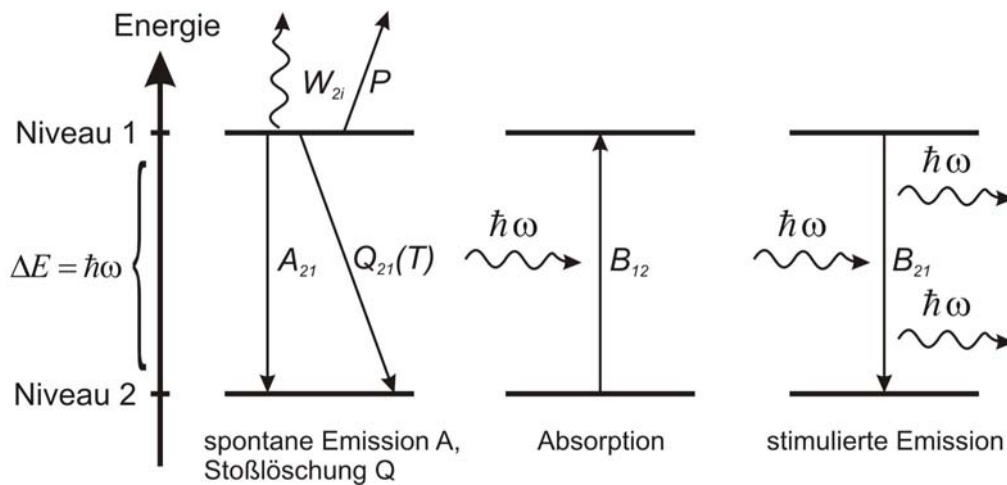


Abb. II.3: Übergangsprozesse unter dem Einfluss eines äußeren elektromagnetischen Feldes im Zwei-Niveau-Modell.

Zur Energieabgabe steht dem Molekül durch unterschiedliche Wechselwirkungen eine Reihe von Möglichkeiten zur Verfügung (s. Abb. II.3). Zu den wichtigsten Wechselwirkungen gehören:

- spontane Emission:
Das Molekül geht spontan, d.h. unabhängig von äußeren Einflüssen vom angeregten Zustand in den Grundzustand über, unter Abgabe eines Photons gleicher Energie. Für die spontane Emission ist die Energieaustauschrate durch den Einsteinkoeffizienten A_{21} gegeben.
- induzierte Emission:
Ein angeregtes Molekül wird durch ein Photon des äußeren elektromagnetischen Feldes mit der entsprechenden Energie stimuliert, in den Grundzustand zurückzukehren und sendet dabei selbst ein Photon gleicher Energie aus.

- Stoßlöschung (Quenching):
Der angeregte Zustand des Moleküls wird durch Stöße mit umgebenden Teilchen strahlungslos entvölkert. Auf dem Weg zum Grundzustand wird keine Strahlung emittiert und das Molekül trägt nicht zum detektierten Signal bei. Die Stoßlöschrates der Fluoreszenz wird mit Q_{21} bezeichnet. (s. Kap. II.2.6.2)
- Prädissoziation P (Zerfall):
Die Anregung von Molekülen mit prädissoziativen Zuständen führt bei deren Besetzung zu einer Bindungsspaltung. Der elektronisch angeregte Zustand wird hier von repulsiven Potentiallinien gekreuzt, an deren Kreuzungspunkten eine gewisse Übergangswahrscheinlichkeit besteht, die zum Zerfall des Moleküls führt. Bei Atmosphärendruck liegt die Lebensdauer prädissoziativer Zustände unterhalb der mittleren Stoßzeit der Moleküle. Die Prädissoziationsrate P ist im Gegensatz zur Löschrates eine Eigenschaft des Moleküls und nicht von äußeren Einflüssen wie Temperatur, Stoßpartner oder Druck abhängig. In solchen Fällen kann die Stoßlöschung bei Atmosphärendruck im Allgemeinen vernachlässigt werden. (s. Kap. II.2.6.1)
- Photoionisation W_{2i} :
Grenzfall der elektronischen Anregung, bei dem ein Elektron völlig aus dem Molekül entfernt wird. Dieser Prozess ist für die Photoelektronenspektroskopie von Belang, für die hier angewendeten Verfahren aber ohne Bedeutung.
- Vibrationsenergietransfer (VET):
Es findet eine strahlungslose Relaxation vom ursprünglich angeregten Vibrationsniveau in ein anderes des elektronisch angeregten Zustandes oder des Grundzustandes statt. Das gemessene Fluoreszenzsignal des Übergangs vom neuen Ausgangsniveau ist daher frequenzverschoben.
- Rotationsenergietransfer (RET):
Die strahlungslose Relaxation findet ebenso vom ursprünglich angeregten Rotationsniveau in ein anderes des elektronisch angeregten Zustandes oder des Grundzustandes statt. Das gemessene Fluoreszenzsignal ist auch hier frequenzverschoben, jedoch in einem deutlich geringeren Umfang als beim Vibrationsenergietransfer.

Die Signalintensität des LIF-Signales ergibt sich für das Zwei-Niveau-Modell durch den folgenden Ausdruck [6]:

$$S_F = \hbar\omega N_2 A_{21} \frac{\Omega}{4\pi} V\varepsilon \quad (II.26)$$

S_F	—	LIF-Signalstärke
$\hbar\omega$	—	Energie des emittierten Photons
N_2	—	Teilchendichte im angeregten Niveau
A_{21}	—	Einsteinkoeffizient der spontanen Emission
Ω	—	Raumwinkel der Detektion
V	—	Nachweisvolumen
ε	—	Nachweiseffizienz des Detektionssystems und der Detektionsoptik (experimenteller Faktor)

Die Größen der Gleichung sind durch die experimentellen Randbedingungen gegeben. Lediglich der in der Gleichung enthaltene Term $N_2 A_{21}$, der die Änderung der Teilchendichte im angeregten Zustand bei Einwirkung eines elektromagnetischen Feldes beschreibt, muss bestimmt werden. Hierzu werden Ratengleichungen der möglichen Prozesse aufgestellt. Die Gleichung erhält eine Form, welche von der Besetzung des Grundzustandes N_1^0 ausgeht. Unter der Annahme einiger Vereinfachungen, wie der Vernachlässigung nicht relevanter Raten lassen sich unter Berücksichtigung einer spezifischen Schwelle der Laserenergie, der Sättigungsschwelle I_{sat} , zwei Grenzfälle für das Verhältnis der eingestrahnten Laserenergie $I_\nu(\nu)$ zu I_{sat} formulieren:

- $I_\nu(\nu) \gg I_{\text{sat}}$:

Die eingestrahnte Laserintensität $I_\nu(\nu)$ ist sehr viel größer als die Sättigungsintensität I_{sat} und man erhält:

$$S_F = \frac{\hbar\omega}{c} N_1^0 \frac{\Omega}{4\pi} V\varepsilon \frac{B_{12}}{B_{12} + B_{21}} A_{21} \quad (II.27)$$

Das beobachtete Fluoreszenzsignal wird unabhängig von der eingestrahnten Laserintensität und der Quenchrage. Diese Methode wird wegen dieser Eigenschaft als Sättigungs-LIF bezeichnet.

- $I_\nu(\nu) \ll I_{\text{sat}}$:

Die eingestrahnte Laserintensität $I_\nu(\nu)$ ist sehr viel kleiner als die Sättigungsintensität I_{sat} und man erhält:

$$S_F = \frac{\hbar\omega}{c} N_1^0 \frac{\Omega}{4\pi} V \mathcal{E} I_\nu(\nu) B_{12} \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}(T)} \quad (II.28)$$

Für den hier geschilderten Fall ist das Fluoreszenzsignal linear abhängig von der eingestrahlten Laserintensität. Daher wird diese Methode auch als lineare LIF bezeichnet. Es ist jedoch notwendig, die Laserenergie simultan zur Fluoreszenzmessung zu bestimmen, da diese ebenso wie die temperatur- und speziesabhängigen Quenchraten, in die Gleichung mit eingehen.

Der Term $\frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}(T)}$ gibt die Fluoreszenzquantenausbeute wieder und wird als

Stern-Volmer-Faktor $\Phi(T)$ bezeichnet.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zur Bestimmung von Hydroxyl-Radikalen (OH) beruhen in beiden Fällen, den 3D-Messungen (Kap. IV) und den Messungen in der Turbinenstrahldüse (Kap. V) auf der Methode der linearen LIF. Im letzteren Fall wurde ein Übergang gewählt, der sich durch seine hohen Signalintensitäten auszeichnet und alternativ auch für Sättigungs-LIF anwenden lässt.

2.6 OH-LIF-Spektroskopie

Das OH-Radikal wurde bereits vielfältig untersucht und ist spektroskopisch gut bekannt [23]. Mit Hilfe abstimmbarer leistungsstarker Excimer-Laser kann es über verschiedene Anregungs-Detektions-Schemata selektiv nachgewiesen werden [9].

Die nachfolgende Tabelle gibt einige Beispiele für geeignete Übergänge an, die häufig zur Messung von OH-LIF herangezogen werden. Diese Übergänge weisen sehr verschiedene Eigenschaften auf, wodurch sie auch für die vielseitigen Anforderungen bei Messungen unterschiedlich gut geeignet sind.

Die Anregung des Überganges erfolgt in jedem Fall vom elektronischen Grundzustand $X^2\Pi(v' = 0)$ aus in den ersten elektronisch angeregten Zustand $A^2\Sigma^+$.

<i>Anregung</i>	<i>Detektion</i>	<i>Eigenschaften</i>
$A-X(3,0)$ 248 nm	$A-X(3,2)$ 295 nm	Prädissoziative LIF, keine Selbstabsorption
$A-X(1,0)$ 283 nm	$A-X(1,1)$ 312 nm	für Farbstoff-Laser, starkes Signal
$A-X(0,0)$ 308 nm	$A-X(0,0)$ 308 nm	Sättigung möglich, starkes Signal
$A-X(0,0)$ 308 nm	$A-X(0,1)$ 343 nm	Sättigung möglich, keine Selbstabsorption

Im Folgenden sind die beiden Anregungs-Detektions-Schemata, die bei den Experimenten im Rahmen dieser Arbeit Verwendung fanden, näher erläutert. Zudem wird in Kapitel II.2.6.2 eine Abschätzung des Einflusses von Stoßlöschung auf die Fluoreszenzausbeute von OH bei einer Anregung bei 248 nm unternommen.

2.6.1 Anregung von OH bei 248 nm

Im Falle einer Anregung des Übergangs $A-X(3,0)$ bei 248 nm ist es möglich, durch Verwendung eines KrF-Excimer-Lasers, verschiedene Rotationslinien der OH(A) ($v' = 3$) Schwingungsbande anzuregen (s. Abb. II.4) [27].

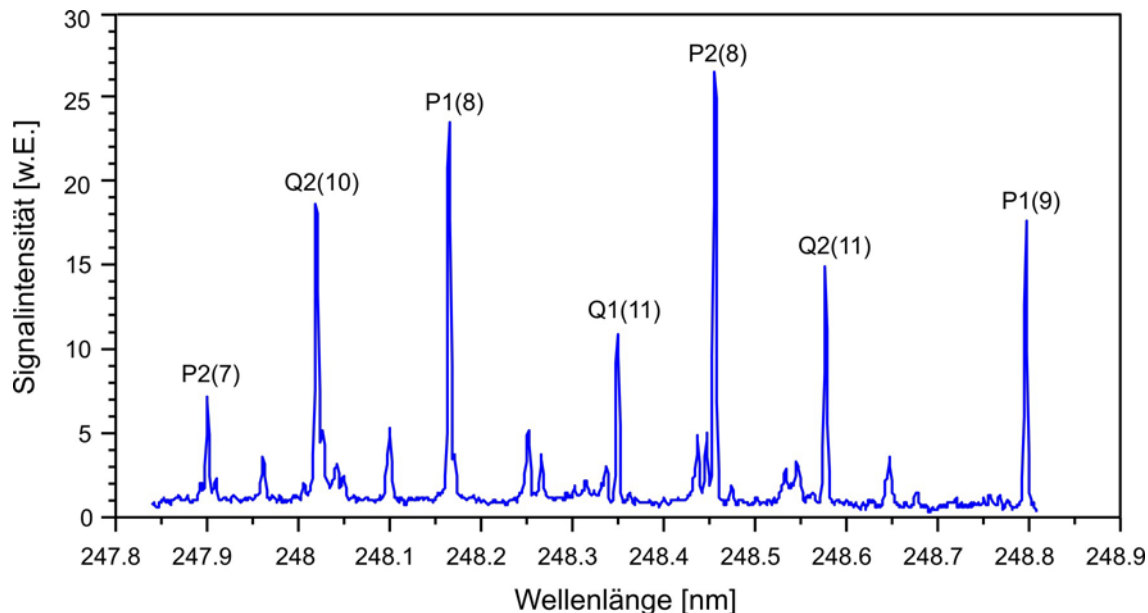


Abb. II.4: Rotationslinien-aufgelöstes Anregungsspektrum im $A-X(3,0)$ -Band von OH bei 248 nm [28].

Der Vorteil dieses Anregungsschemas liegt in der Tatsache, dass das dritte Schwingungsniveau des elektronisch angeregten Zustandes von einer repulsiven Potentialkurve (${}^4\Sigma^-$) gekreuzt wird (s. Abb. II.5). Das führt dazu, dass die meisten angeregten OH-Radikale aufgrund der hohen Übergangswahrscheinlichkeit rasch dissoziieren (Prädissoziation).

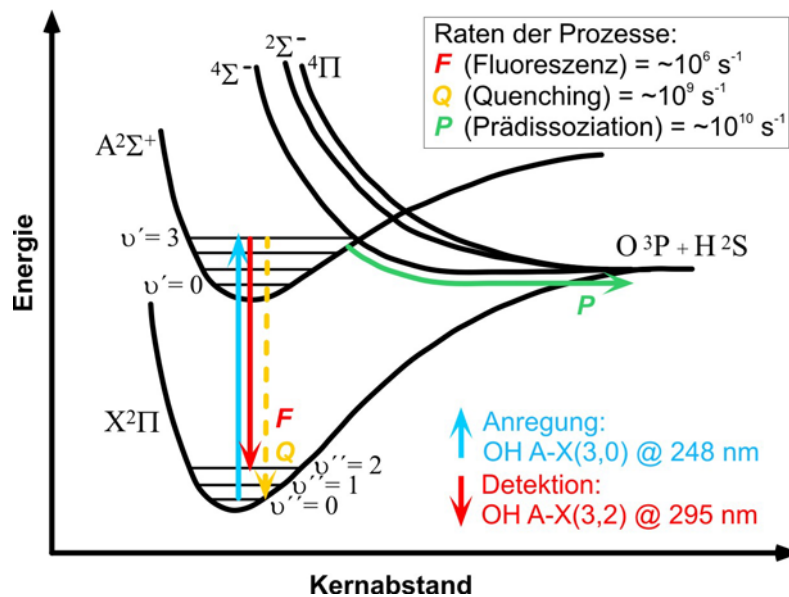


Abb. II.5: Übergänge des A-X(3,0) Anregungsschemas im OH-Potentialdiagramm. Prozesse, wie Stoßlöschung Q und Prädissoziation P vermindern die Ausbeute an Fluoreszenz F [29].

Die Lebensdauer des OH(A) ($v' = 3$) Schwingungsniveaus liegt bei etwa $1,5 \times 10^{-10}$ s [22, 30]. Dadurch ergibt sich ein entscheidender Vorteil: Unter Atmosphärendruck ist die Lebensdauer des angeregten Zustandes weniger durch variierende Quenchraten $Q(T)$ (durch Stoßlöschung) bestimmt als bei höheren Drücken. Diese veränderlichen Raten äußern sich normalerweise in lokalen Schwankungen der Fluoreszenzquantenausbeute. Wird jedoch die Lebensdauer des angeregten Zustandes überwiegend durch den prädissoziativen Zerfall bestimmt, so ist der Einfluss von Stoßlöschung stark reduziert [27].

In diesem Fall vereinfacht sich die Quantifizierung des gemessenen LIF-Signals. Für den Fall, dass für die Geschwindigkeiten von Prädissoziation P , Stoßlöschung Q und spontaner Emission A_{21} gilt $P \gg Q > A_{21}$, so lässt sich für den Stern-Volmer-Faktor Φ schreiben [6]:

$$\Phi(T) = \frac{A_{21}}{A_{21} + P + Q(T)} \approx \frac{A_{21}}{P} \quad (\text{II.29})$$

Inwieweit diese Annahme zutreffend ist, soll eine Abschätzung anhand von berechneten Daten in Kapitel II.2.6.2 genauer zeigen.

Die kurze Prädissoziationslebensdauer und eine geringe Übergangswahrscheinlichkeit des $v' = 3$ Schwingungszustandes äußern sich jedoch auch in kleinen Fluoreszenz-Intensitäten für diesen Übergang. Durch den Einsatz eines leistungsstarken KrF-Excimer-Lasers ist es aber

trotzdem möglich, eine ausreichende Fluoreszenzintensität für die Detektion zweidimensionaler LIF-Intensitätsverteilungen des OH-Radikals zu erhalten. Benachbarte, durch VET bevölkerte Schwingungsniveaus im elektrisch angeregten Zustand haben eine geringere Neigung zur Prädissoziation. Ihre Lebensdauer wird daher stark durch Quenchprozesse beeinflusst. Um den Einfluss von Stoßprozessen weitest möglich zu vermeiden wird daher die Detektion auf die Emission aus dem $v' = 3$ Zustand beschränkt (hier: (3,2) Übergang).

Einen Überblick über Emissionen aus benachbarten Niveaus zeigt das Emissionsspektrum in Abb. II.6. Ein Ansatz für die Quantifizierung des Einflusses der Emission aus dem (2,1)-Schwingungsübergang wird anhand dieses Spektrums in Kapitel IV.2.3 vorgenommen.

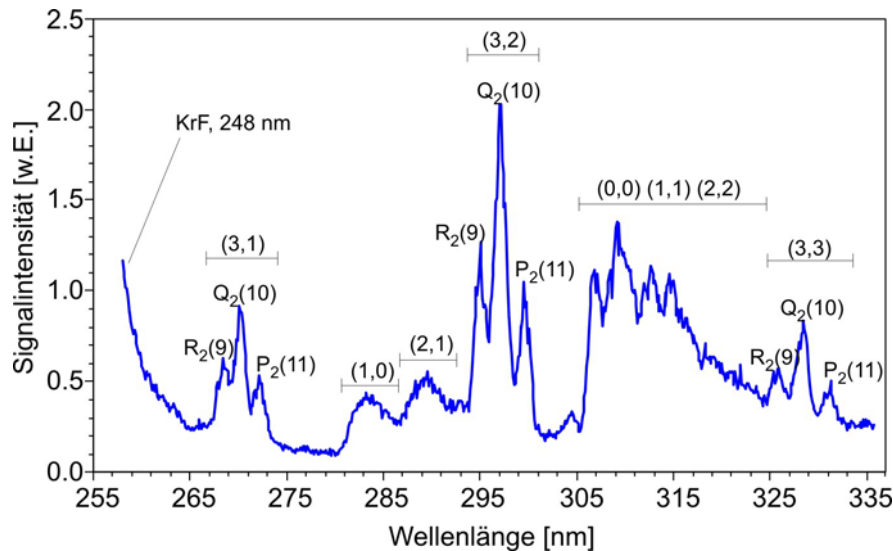


Abb. II.6: Emissionsspektrum von OH nach Anregung des A-X(3,0) P₂(8)-Übergangs [28].

2.6.2 Stoßlöschung (Quenching)

Bei einer Kollision angeregter Moleküle mit anderen Stoßpartnern kann es zu einem Energieübertrag kommen, wodurch das Molekül in einen nicht fluoreszierenden Zustand, z.B. den elektronischen Grundzustand, übergeht. Man spricht daher von Stoßlöschung oder Quenching.

Bei der Quantifizierung von LIF-Messungen ist es oft schwierig, den Einfluss von Quenching auf die Fluoreszenzausbeute zu bestimmen, da dieser von lokalen Parametern wie Temperatur, Druck, Gaszusammensetzung sowie dem Anregungszustand des laserangeregten Moleküls abhängt [31-33].

Für die Abschätzung des Quench-Einflusses auf die Fluoreszenzausbeute von OH wird hier angenommen, dass die Stoßquerschnitte unabhängig vom Rotationszustand des OH-Moleküls sind. Detaillierte Untersuchungen haben ergeben, dass bei sehr genauer Betrachtung durchaus auch ein messbarer Einfluss des Rotationszustandes von OH beobachtet werden kann (siehe dazu [34-38]). Für die hier angestrebte Abschätzung wird dieser Einfluss jedoch vernachlässigt, da mit steigender Rotationsanregung der Einfluss von Quenching durch abnehmende Stoßquerschnitte weiter zurückgeht.

Die Quenchrate Q ist gegeben durch die Gleichung [6]

$$Q = \sum_i n_i k_{Qi} = \sum_i n_i \sigma_i v_i = \frac{p}{kT} \left(\frac{8kT}{\pi} \right)^{1/2} \sum_i \frac{x_i \sigma_i}{\sqrt{\mu_i}} \quad (II.30)$$

n_i	—	Teilchendichte der Spezies i
k_{Qi}	—	Geschwindigkeitskoeffizient der Stoßlöschung für Spezies i
σ_i	—	Stoßquerschnitt der Spezies i mit OH
v_i	—	relative Geschwindigkeit der Spezies i zu OH
x_i	—	Molenbruch der Spezies i
μ_i	—	reduzierte Masse zwischen Spezies i und OH

Es gibt zahlreiche Untersuchungen, die sich mit der Bestimmung von Stoßquerschnitten der OH $A^2\Sigma^+$ Stoßlöschung befassen [39-41]. Für die hier vorgenommene Abschätzung kommen die Resultate von Tamura et al. [42] zum Einsatz. Die dort angegebenen Stoßquerschnitte beschränken sich wie viele andere Publikationen auf das Niveau $v' = 0$, aus dem einfachen Grund, dass für höhere Schwingungsanregungen noch nicht genügend Daten vorhanden sind. In ihrer Beschreibung des Harpooned Models des Quenchings erläutern Paul et al. [41] ihre Beobachtungen an wenigen Beispielen, die zeigten, dass sich die zu beobachtenden Stoßquerschnitte bei höherer Schwingungsanregung ($v' = 1$) nur geringfügig ändern. Somit sollen die Daten hier als ausreichend angesehen werden, um mit ihrer Hilfe den Einfluss von Quenching auch für $v' = 3$ in hinreichender Weise abzuschätzen.

Bei Tamura et al. [42] werden Modelle für die Temperaturabhängigkeit der Stoßquerschnitte für OH mit einer Auswahl von Stoßpartnern geliefert, welche bei der Verbrennung eine wichtige Rolle spielen. Die Modelle sind in der Lage, die Temperaturabhängigkeit von Stoßquerschnitten im Temperaturbereich der Experimente vorherzusagen. Bei der hier durchgeführten Abschätzung werden sieben mögliche Stoßpartner berücksichtigt (CH_4 , CO , CO_2 , H_2 , H_2O , N_2 , und

O₂). Die Summe der Molenbrüche dieser sieben Spezies macht etwa 99,3% der Gesamtsumme der Molenbrüche aller beteiligten Spezies aus.

Es ist zu beachten, dass durch die lineare Druckabhängigkeit der Stoßlöschung die Annahme einer einheitlichen Quenchrates für alle Flammenbedingungen nicht gültig ist. Dagegen wirken sich leichte Variationen des Äquivalenzverhältnisses des Brennstoffgemisches nur geringfügig auf die Löschrates aus. Diese Veränderungen sind auf den leicht ansteigenden Anteil an schweren Stoßpartnern bei fetterem Gemisch zurückzuführen.

Um die Temperaturabhängigkeit der Stoßquerschnitte für OH-Quenching zu beschreiben, wird ein empirischer Term der Form

$$\sigma_Q = \sigma_{Q^\infty} \exp(\varepsilon / kT) \quad (II.31)$$

eingesetzt. Die Parameter entstammen einer Anpassung an das von Paul [41] beschriebene abgewandelte Modell eines Elektron-Transfer Harpoon Mechanismus, welches in der Lage ist, neben den Langstreckenwechselwirkungen bei hohen Temperaturen (geringer Temperatureinfluss) auch den Einfluss eines Stoßkomplexes der beiden Stoßpartner bei niedrigen Temperaturen zu beschreiben. Eine Übersicht der Parameter für die verschiedenen Stoßpartner ist in Tab. II.1 zusammengefasst.

Spezies	σ_{Q^∞} [Å ²]	ε/k [K]	k_{Q_i} [10 ⁻¹³ cm ³ s ⁻¹] (*)
N ₂	0,4	624	4,47 $\sigma_Q T^{0,5}$
O ₂	8	243	4,37 $\sigma_Q T^{0,5}$
H ₂ O	20	434	4,92 $\sigma_Q T^{0,5}$
H ₂	4,5	224	10,88 $\sigma_Q T^{0,5}$
CO ₂	11	488	4,16 $\sigma_Q T^{0,5}$
CO	12	397	4,47 $\sigma_Q T^{0,5}$
CH ₄	11	320	5,07 $\sigma_Q T^{0,5}$

Tab. II.1: Parameter und Ausdrücke für die Berechnung der Stoßquerschnitte für OH [42]. (*) für σ_Q in Å².

Die Speziesmolenbrüche der potentiellen Stoßpartner, die außerdem für eine Berechnung der temperaturabhängigen Quenchrates benötigt werden, wurden einer Flamelet-Simulation einer vorgemischten Gegenstromflamme mit vergleichbarem Brennstoff/Luft-Gemisch, wie im

Experiment in Kapitel IV verwendet, entnommen.^b Bei dem Modell handelt es sich um eine adiabatische Flamme, die sich im Stagnationsgebiet zwischen zwei gegeneinander gerichteten vorgemischten Erdgas/Luftströmen ausbildet. (Lewiszahl $Le = 1$ (Diffusivität); Äquivalenzverhältnis $\Phi = 0,95$, Speziesmolenbrüche des unverbrannten Gemisches $x(\text{O}_2) = 0,1909$, $x(\text{N}_2) = 0,7182$ und $x(\text{CH}_4) = 0,0909$; Starttemperatur 300 K, Druck 1 bar).

Die Abb. II.7 zeigt ein Temperaturprofil und die lokale Quenchraten von OH, die sich bei dieser Temperatur und mit den am Ort vorhandenen Stoßpartnern ergibt.

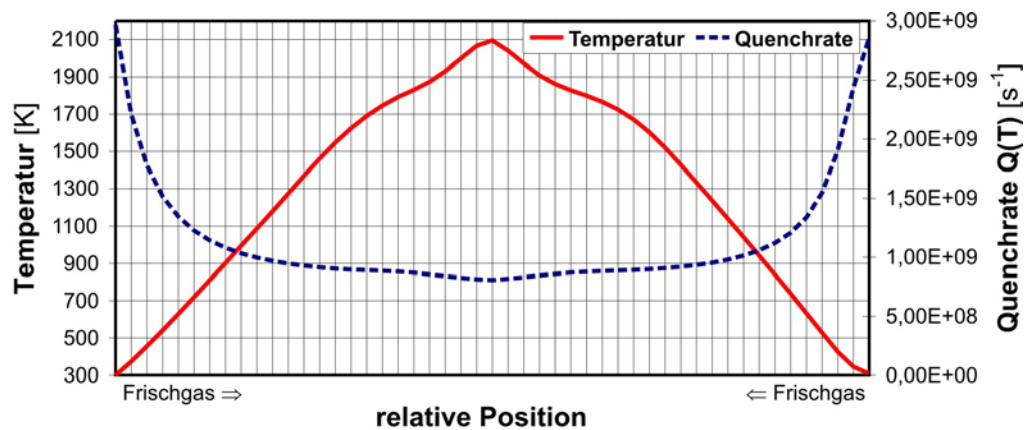


Abb. II.7: Simuliertes Temperaturprofil durch die Flammenfront und berechnete lokale Quenchraten für OH in einer vorgemischten Gegenstromflamme (vorgemischte Zwillingsflamme, Frischgasstrom von zwei Seiten) mit einem Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0,95$ (Methan/Luft).

Die Quenchraten sind in Bereichen, in denen Temperaturen über 900 K vorherrschen, nahezu konstant und nehmen nur in den äußeren kälteren Flammenregionen Werte größer $1 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ an. Im Außenbereich der Flamme, bei Temperaturen unterhalb 900 K, steigt sie jedoch rasch an.

Bei einer Auftragung der Quenchraten von OH gegen die Temperatur bei der oben beschriebenen Flammengeometrie ergibt sich ein Zusammenhang wie in Abb. II.8 dargestellt. Geht man nun bei der prädissoziativen LIF davon aus, dass die Fluoreszenzausbeute lediglich durch die Prädissoziation bestimmt ist, der Stern-Volmerfaktor sich also nur aus $\Phi(T) = A_{21}/P$ zusammensetzt, so resultiert daraus zwangsläufig eine Abweichung gegenüber einer Berücksichtigung von Prädissoziation und Quenching. In der Abb. II.8 ist auf der Skala rechts der relative Anteil an Fluoreszenzsignal angegeben, der aufgrund von Quenching für den berechneten Fall verlorengelassen (für Anregung $A-X(3,0)P_2(8)$, mit $v' = 3$, $J' = 7$;

^b Quelle: R. Schießl, ITV, Universität Stuttgart, persönliche Mitteilung

$A_{21} = 1,542 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$; vgl. Gleichung II.29). Da bei Kalibriermessungen zur Quantifizierung das Fluoreszenzsignal in gleicher Weise von Quenching beeinflusst wird, ergibt sich ein Fehler lediglich aus der Abweichung des Quenchbeitrags bei der Messung gegenüber der Kalibration aufgrund von lokalen Temperatur- und Spezieskonzentrationsunterschieden. Unter der Annahme, dass die Kalibrationsmessung in einem Bereich der Flamme durchgeführt wird, dem die Bedingungen bei ca. 2100 K (geringster Quencheinfluss) entsprechen und die eigentlich relevanten Daten bezüglich OH fast ausschließlich aus Bereichen der Flamme stammen, die Temperaturen von mehr als 900 K aufweisen, lässt sich leicht ein maximal möglicher Fehler abschätzen. Gemäß Abb. II.8 liegt der Anteil an Signal, welcher durch Quenching verloren geht, im berechneten Fall für Temperaturbedingungen über 900 K zwischen 12 und 15%. Der Fehler, der also aus der Vernachlässigung von Quenching resultiert, liegt für diesen Bereich unter 3%. Außerhalb des für Messungen relevanten Bereiches nimmt er zwar rasch zu, jedoch ist unter diesen Bedingungen kein OH mehr zu finden (vgl. Abb. II.2).

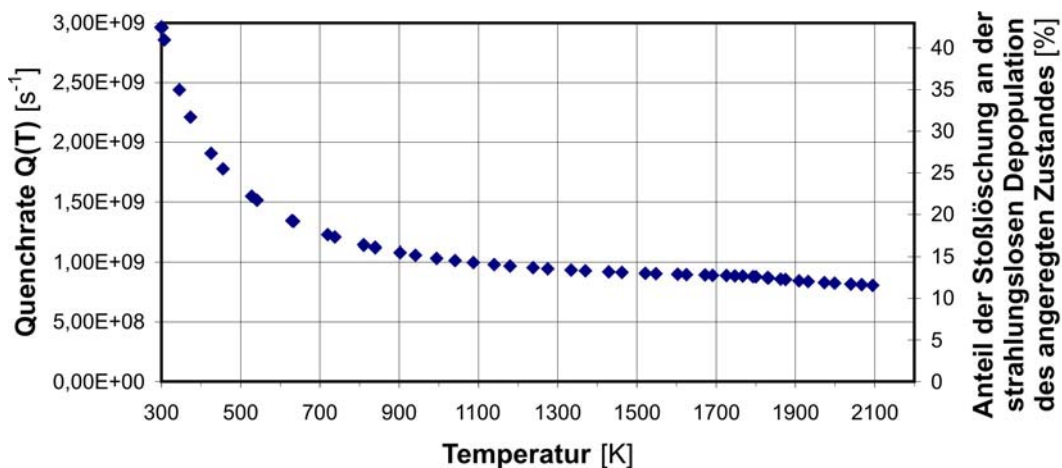


Abb. II.8: Quenchrate von OH aufgetragen gegen die Temperatur am Ort. Der Anteil der Stoßlöschung an der strahlungslosen Depopulation des angeregten Zustandes ergibt sich direkt aus dem Betrag der Quenchrate. Er gibt an, wie weit die Fluoreszenzquantenausbeute im berechneten Fall bei einer Vernachlässigung von Quenching gegenüber einer vollständigen Betrachtung von Prädissociation und Quenching abweicht.

Somit bleibt, bei Vernachlässigung von Quenching, als einzige temperaturabhängige Funktion der Einfluss der Grundzustandsbesetzung über den Boltzmann-Term erhalten. Die Temperaturabhängigkeit dieses Terms ist in Abb. II.9 für den Grundzustand von OH mit $\nu' = 3$ und $J = 8$ im Temperaturbereich von 1000 bis 2000 K grafisch dargestellt.

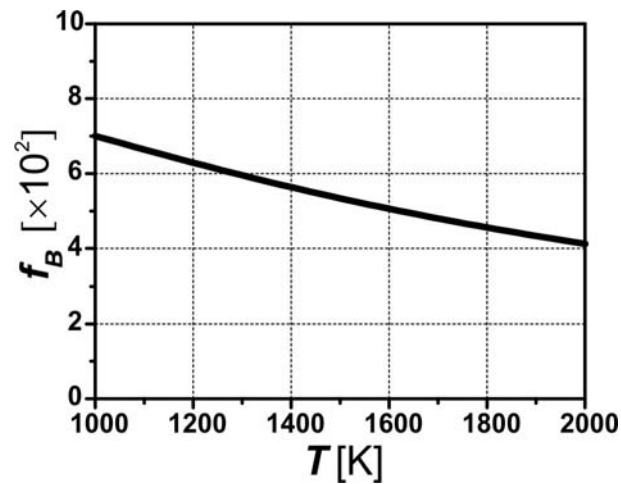


Abb. II.9: Temperaturabhängigkeit der Grundzustandsbesetzung von OH ($v'' = 3$; $J = 8$). Gegeben durch die in Kapitel II.2.2 beschriebene Boltzmann-Statistik.

2.6.3 Anregung von OH bei 308 nm

Bei der Anregung von OH bei 308 nm wird der $A-X(0,0)$ -Übergang von OH angeregt. Dabei bietet sich ein XeCl-Excimerlaser an, dessen Emissionen zur Anregung weniger Rotationslinien im $A-X(0,0)$ -Band geeignet sind.

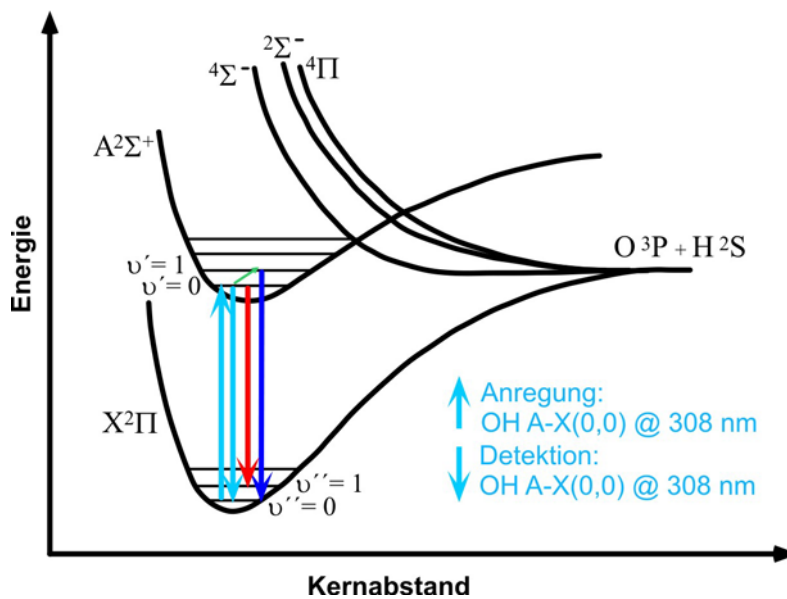


Abb. II.10: Spektroskopische Übergänge im OH-Potentialdiagramm für die Anregung im $A-X(0,0)$ -Band von OH. Neben der resonanten Fluoreszenz treten auch frequenzverschobene Emissionen aus der (0,1)- und (1,0)-Bande auf.

Als Übergang mit der höchsten Übergangswahrscheinlichkeit für Absorption im Abstimmbereich des Lasers bietet sich die $Q_1(3)$ -Linie an (Einsteinfaktor der induzierten Absorption $B_{12} = 1,009 \times 10^{18} \text{ m}^3 \text{ J}^{-1} \text{ s}^{-2}$) [22, 43]. Mögliche Übergänge sind im OH-Potentialdiagramm in Abb. II.10 dargestellt. Neben der resonanten Fluoreszenz bei 308 nm treten auch rot- und blauverschobene Emissionen auf. Die rotverschobenen Emissionen stammen aus dem Schwingungsgrundzustand $v' = 0$ des elektronisch angeregten Zustandes und enden in einem beliebigen Rotationsniveau des ersten angeregten Schwingungszustandes ($v'' = 1$) im elektronischen Grundzustand. Dagegen stammen die blauverschobenen Emissionen aus dem ersten Schwingungsniveau des elektronisch angeregten Zustandes und enden im Schwingungsgrundzustand ($v'' = 0$). Die Besetzung dieses höheren Niveaus im elektronisch angeregten Zustand erfolgt durch zusätzlichen Energieübertrag in Stößen zweiter Art auf bereits angeregte Moleküle.

Im Gegensatz zur Anregung bei 248 nm gibt es für die angeregten Zustände im Niveau $v' = 0$ keine Möglichkeit zu prädissoziieren. Für Atmosphärendruckflammen bewegt sich die Quenchrage, wie oben gezeigt, in einer Größenordnung von ca. $1 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$. Sie tritt nun aber lediglich mit dem Prozess der spontanen Emission in Konkurrenz, deren Geschwindigkeit bei etwa $1,45 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ liegt. Die spontane Emission des (0,0)-Bandes ist damit zwar fast einhundert Mal stärker als im (3,0)-Band, jedoch werden hier mehr als 99% der angeregten Moleküle durch Stöße gelöscht. Damit ist aber der Anteil von Quenching an den beteiligten Prozessen für quantitative Messungen nicht mehr vernachlässigbar, da dieser damit einen bedeutenden Einfluss ausübt und darüber hinaus von lokalen Bedingungen (Temperatur, Stoßpartner) abhängig ist.

Die Zielsetzung des in Kapitel V beschriebenen Experimentes erforderte jedoch keine Quantifizierung, da es sich um reine Strukturuntersuchungen handelt. Aus diesem Grund wurde der Einfluss von Quenching hier nicht berücksichtigt. Stattdessen machte man sich die bedeutend höhere Fluoreszenzausbeute des $A-X(0,0)$ -Überganges im Vergleich zu einem prädissoziativen Übergang zu Nutzen, welche aus der hohen Anregungseffizienz und der viel höheren Quantenausbeute (ca. 750-fache von $A-X(3,0)$) dieses Übergangs resultierte.

III. Experimentelle Verfahren

Nachdem im letzten Kapitel die Theorie der spektroskopischen Methoden, und im Speziellen der OH-LIF besprochen wurden, befassen sich die nachfolgenden Kapitel mit den experimentellen Aspekten einer Messung von laserinduzierter Fluoreszenz, welche in dieser Arbeit zum Tragen kamen. Zuerst wird das allgemeine Verfahren der zweidimensional-abbildenden Fluoreszenzdetektion (2D-LIF) vorgestellt. Im darauf folgenden Kapitel wird dann der Schritt von 2D zu „3D“ beschrieben und anhand der mehr oder weniger chronologischen Entwicklung gängiger dreidimensional-abbildender Verfahren erläutert. Es soll deutlich gemacht werden, wie sich die apparativen Anforderungen verschärfen, wenn dieser Schritt vollzogen wird.

1 Zweidimensionale laserinduzierte Fluoreszenz (planare LIF, PLIF, 2D-LIF)

Zu den wohl am häufigsten verwendeten Verfahren der nicht-intrusiven Lasermesstechniken zählt die Methodik der zweidimensionalen laserinduzierten Fluoreszenzmessung [44, 45]. Im Gegensatz zu Fluoreszenz-Punktmessungen ist es möglich, nicht nur Spezieskonzentrationen in einem einzelnen Punkt zu messen, sondern einen zweidimensionalen Schnitt durch das zu untersuchende Objekt zu legen. Man erhält ein Bild, das in jedem Bildpunkt die jeweilige LIF-Intensitätsinformation an dem entsprechenden Ort im untersuchten Objekt enthält. Dafür ist es jedoch notwendig, den anregenden Laserstrahl in die Form eines Laserlichtblattes, einem Strahl mit einem Profil von mehreren Millimetern bis wenigen Zentimetern an Höhe, jedoch nur wenigen hundert Mikrometern Dicke, zu formen. Dies geschieht in der Regel durch die Verwendung von Zylinderlinsen langer Brennweite oder einer Teleskopanordnung von Zylinderlinsen. Der so geformte Strahl wird wie in Abb. III.1 durch das Objekt gelenkt und die auftretende Fluoreszenz in der Schnittebene meist mit bildverstärkenden CCD-Kameras aufgenommen. Im einfachsten Fall lassen sich die gemessenen Fluoreszenzintensitäten schließlich durch Kalibration in zweidimensionale Konzentrationsverteilungen überführen.

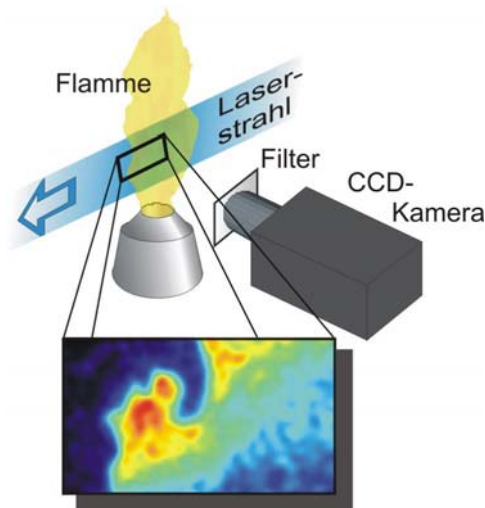


Abb. III.1: Schematische Darstellung eines experimentellen Aufbaus zur zweidimensionalen Messung von LIF. Analoge Aufbauten findet man auch bei anderen zweidimensionalen Verfahren (Rayleigh, 2D-Raman)

2 „3D“-Messtechniken

2.1 Von 2D zu „3D“ – Aufwand und Nutzen

Der größte Teil, der in der heutigen Messtechnik eingesetzten Verfahren beschränkt sich auf null, eine oder zwei Ortsdimensionen (z.B. Raman, CARS, Rayleigh und LIF). Die aus diesen Verfahren gewonnenen Erkenntnisse sind für zahlreiche Fragestellungen ausreichend. So gibt es vielfältige Untersuchungen, die sich vor allem mit der für die Verbrennung sehr wichtigen Untersuchung von Gasphasenmischungsprozessen befassen. Hierzu wurden z.B. die Verfahren der zweidimensionalen Raman-Streuungsmessungen [46], Rayleigh-Streuungsmessungen [47, 48], laserinduzierten Fluoreszenz (PLIF) und Kombinationen selbiger Verfahren eingesetzt [49]. Die Vorteile der zweidimensionalen Verfahren gegenüber Punktmessungen liegen in ihrer meist hohen örtlichen und zeitlichen Auflösung [9].

Einige Simulationsmethoden für eine vereinfachte Behandlung der turbulenten Verbrennung basieren auf Untermodellen, die sich auf statistische Informationen über die Kopplung von chemischen Reaktionen und turbulentem Transport stützen. Zu diesen gehören z.B. die Large Eddy Simulationen oder Ansätze ausgehend von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (PDFs) [50-52]. Besonders die Analyse von Korrelationen zwischen verschiedenen Größen, wie

Spezieskonzentrationen, Temperatur und von Gradienten dieser Größen, kann zu enormen Vereinfachungen bei der numerischen Simulation komplexer vorgemischter Flammen beitragen [1]. Eine Möglichkeit, solche Informationen zu erhalten, ist zum einen, diese aus Direkten Numerischen Simulationen (DNS) turbulenter Flammen zu extrahieren [53, 54], zum anderen aber auch aus experimentellen Daten, wie z.B. Punktmessungen aus kombinierten Raman-LIF-Untersuchungen [55].

Diese Methoden liefern jedoch nur zweidimensionale Querschnitte des untersuchten Objektes. Sie können folglich nicht *per se* zwischen isolierten Gebieten (brennende Gaspakete) und Strukturen, die über die dritte Dimension miteinander verbunden sind, unterscheiden. Die Information, wie sich eine Struktur in die Richtung senkrecht zur Messebene ausbreitet, fehlt. Darüber hinaus muss man bedenken, dass im Falle einer Messung von Gradienten mit den beschriebenen Methoden nur Projektionen der realen Gradienten auf eine zweidimensionale Ebene erhalten werden. Sollen die gemessenen Daten jedoch in turbulente Verbrennungsmodelle einfließen, muss die dreidimensionale Struktur turbulenter Flammen mit berücksichtigt werden [56]. Dies bedeutet jedoch, dass ein „3D“-Messverfahren notwendig wird.

Um ein solches „3D“-Messverfahren zu realisieren sind vor allem zwei Dinge zu beachten:

- Es gibt bisher kein „echtes“ 3D-Messverfahren. Es ist prinzipiell nicht möglich, mit nur einer einzigen Momentaufnahme einen gesamten dreidimensionalen Raum zu erfassen. Die Messung in der dritten Dimension wird überwiegend durch das Aneinanderreihen zweidimensionaler Schnittaufnahmen realisiert.
- Abhängig vom untersuchten Objekt sind die Anforderungen an die Messmethode stark variabel. So ist z.B. die Untersuchung eines stationären Objektes durch schrittweises Abrastern ohne zeitliche Beschränkung ohne weiteres möglich. Vollkommen anders verhält es sich dagegen, geht man zu einem instationären, sich zeitlich verändernden Objekt wie einer turbulenten Strömung über. Durch die starke zeitliche Varianz der Strukturen muss die komplette Messung innerhalb eines Zeitfensters abgeschlossen sein, das kürzer ist als die Zeitskala der Dynamik des Objektes. Diese Bedingung stellt teilweise hohe apparative Anforderungen an das Experiment in Bezug auf Anregung und Detektion.

Im Fall einer Untersuchung mit dem Ziel, speziell z.B. Gradienten in Strömungen oder Flammen zu untersuchen, oder auch die Ausrichtung der Oberfläche der Flammenfront, der Reaktionszone einer Flamme zu bestimmen, gibt es neben der Option der Schnitttechnik mit parallelen Ebenen auch noch die Möglichkeit, gekreuzte Messebenen einzusetzen. Dies erlaubt, entlang der Kreuzungslinie, LIF-Intensitäten zu bestimmen, deren Gradienten durch die zusätzlich vorhandene Information in der zweiten Messebene in allen drei Raumrichtungen bestimmt werden können.

Somit bieten sich im Groben, je nach Anwendung, zwei verschiedene Ansatzpunkte, um dreidimensionale Informationen zu erhalten: eine parallele und eine gekreuzte Messebenen-anordnung (Abb. III.2).

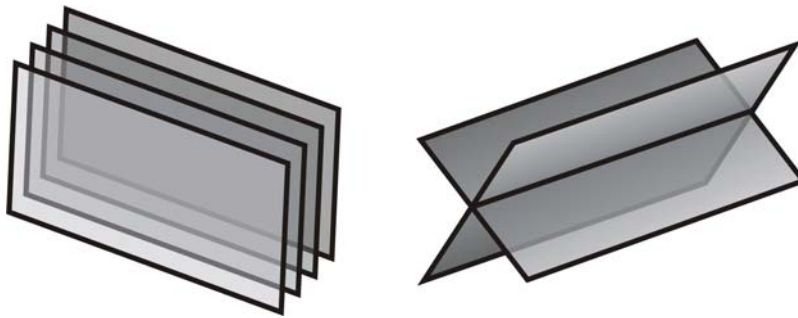


Abb. III.2: Mögliche Anordnungen der Messebenen, abhängig von den Anforderungen an das Experiment. Links: parallele Ebenenanordnung. Die Auflösung in die dritte Dimension wird durch Abstand und Anzahl der Messebenen bestimmt. Rechts: gekreuzte Ebenenanordnung. Die 3D-Information mit hoher Auflösung befindet sich auf der Kreuzungslinie.

Die Vor- und Nachteile der beiden Methoden liegen klar auf der Hand:

- Parallele Anordnung zweier oder mehr Ebenen
 - Visualisierung ausgedehnter Bereiche des untersuchten Objektes.
 - Die Ortsauflösung in der Richtung senkrecht zu den Messebenen ist jedoch abhängig vom Abstand der Messebenen und dadurch relativ niedrig.
 - Das Signal aus den Messebenen muss separiert werden. Dies kann durch zeitversetzte Anregung oder durch spektrale Separation geschehen. Mit zunehmender Anzahl der Messebenen steigen somit die Anforderungen an das Messsystem enorm an. Aufwändige optische Separationsverfahren und Hochgeschwindigkeitskamerasysteme werden nötig.
 - Instantane Detektion ist nur bedingt möglich, solange sich der Detektionszyklus unterhalb der Zeitskala der Turbulenz bewegt.

- Gekreuzte Anordnung zweier Ebenen
 - 3D-Information nur entlang einer Linie. Keine Untersuchung ausgedehnter Bereiche möglich.
 - Jedoch: hohe Auflösung entlang der Schnittlinie.
 - Quasi-instantane Detektion möglich.
 - Ideale Geometrie für die Kombination mit anderen Messverfahren, wie z.B. 1D-Raman Linienmessungen, die in einem limitierten Bereich der Schnittlinie Temperaturprofile und Multispeziesverteilungen liefern können.

In den folgenden Abschnitten sind jeweils einige Anwendungsbeispiele zu den beiden Methoden aufgeführt, welche die rasch ansteigenden Anforderungen der Messmethode an die Apparatur deutlich machen.

2.1.1 Anwendung paralleler Schnittebenen

Am einfachsten gestaltet sich die Untersuchung dreidimensionaler Strukturen wohl in Experimenten wie im Falle von Yip et al. [57], der sich bereits im Jahr 1986 mit dem Thema befasste. Er führte eine stets reproduzierbare photoakustisch verwirbelte Jetströmung von Freongas in nacheinander folgenden Schritten stückweise durch seine Anregungs-Detektionsebene und setzte die so erhaltenen Querschnitte anschließend zu einem dreidimensionalen Bild zusammen. Diese Methode ist jedoch nur in den wenigsten Fällen anwendbar, da das Interesse an Untersuchungen von Strömungen nicht nur auf Objekte mit reproduzierbaren Eigenschaften beschränkt ist, sondern vor allem turbulente Strömungseigenschaften im Mittelpunkt des Interesses stehen. Schwieriger gestaltet sich das Problem somit, wenn ein stärker turbulentes System untersucht wird. In dem Fall ist es notwendig, dass die Aufnahme der parallel angeordneten Messebenen innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls abgeschlossen ist. Eine Detektion von Streulicht in zwei Ebenen bei zwei verschiedenen Wellenlängen und mit zwei Kameras war der nächste Schritt in der Entwicklung [58]. Diesem Ansatz folgten auch Su und Clemens [59] in ihrer simultanen Messung der Rayleigh-Streuung und 2D-LIF in einer mit Aceton versetzten Propangasströmung. Chen und Bilger [60, 61] benutzten eine Kombination aus einer 2-Ebenen-Rayleigh-Streulichtmessung und einer 1-Ebenen-OH-LIF-Messung, um die dreidimensionale Flammenfrontstruktur vorgemischter Kohlenwasserstoff-Luft-Flammen und von mageren Wasserstoff-Luft-Flammen bei unterschiedlichen Turbulenzgraden zu untersuchen. Ebenfalls drei Messebenen nutzten Landefeld et al. [62] in ihrem Experiment zur

Untersuchung von Temperatur- und OH-Speziesverteilungen in einem turbulenten vorgemischten Brenner technischen Maßstabs (TECFLAM). Hier kamen zur simultanen Messung von Rayleigh-Streuung und OH-LIF in jeder der Ebenen neben zwei Excimerlasern auch sechs bildverstärkende Kameras zum Einsatz. Andere Verfahren, wie das von Frank et al. [63] bedienten sich mehrerer Wellenlängen zur Anregung. Hierbei wurde die frequenzverdoppelte und -verdreifachte Strahlung eines Nd:YAG-Lasers verwendet, um vier benachbarte Ebenen auszuleuchten, welche mittels eines facettierten dielektrisch beschichteten Bildteilers auf den Chip einer Kamera abgebildet wurden. Es wird jedoch schnell klar, dass ein einfaches Hinzufügen weiterer Messebenen nicht leicht zu realisieren ist. Daher wandten Yip et al. [64] in ihrer Untersuchung einer mit Partikeln versetzten Luftströmung ein Verfahren an, bei dem sie den Laserstrahl eines Argonionenlasers mittels eines rotierenden Spiegels durch die Strömung führten und mit Hilfe eines weiteren rotierenden Spiegels die bis zu sechs abgerasterten Ebenen auf eine Kamera abbildeten. Diese Methode wurde schließlich sogar noch unter Zuhilfenahme einer Framing-Kamera auf zwölf Ebenen pro Messzyklus ausgebaut [65]. Das Verfahren wurde weiterhin charakterisiert und angewendet [66] und sogar auf vier Dimensionen erweitert [67], indem zu den 3D-Messungen auch zusätzlich die zeitliche Entwicklung einer turbulenten Strömung untersucht wurde. Auch in technischen Anwendungen fand dieses Verfahren bereits Verwendung. Nygren et al. [68] wendeten das Abtast-Verfahren mit acht parallelen Ebenen erfolgreich in einem HCCI-Motor an. Nötig war dazu jedoch ein kostenaufwändiger experimenteller Aufbau bestehend aus einem Lasercluster aus vier Doppelpulslasern und einer Hochgeschwindigkeits-Framing-Kamera mit 8 Detektoren.

Der Vollständigkeit halber sei hier auch erwähnt, dass sich dieses Verfahren vor allem auch bei der Untersuchung von Mischungsprozessen in Flüssigkeiten als besonders geeignet erweist. Hier genießt man den besonderen Vorteil gegenüber einer Untersuchung in der Gasphase, dass die Auflösung des Systems abhängig von der zur Verfügung stehenden Zeit für einen Abtastzyklus ist, innerhalb dem sich das System nicht weiterbewegen darf. Dies hängt konkret von der Strömungsgeschwindigkeit des Systems ab, genauer vom Verhältnis von kinematischer Viskosität und molekularer Diffusivität des zugemischten Fluids (z.B. Tracer). Die Schmidt-Zahl ($Sc = \nu/D$) ist eine dimensionslose Kennzahl, die das Verhältnis von konvektivem (kinematische Viskosität ν) zu diffusivem Stofftransport (Diffusionskoeffizient D) beschreibt. Für Gase ist sie ca. 1, für Flüssigkeiten ca. 2000 [69]. Bei hohen Werten ($Sc \gg 1$) ist der Impulstransport ausgeprägter als der Stofftransport. Das Verhältnis der kleinsten Längenskalen von Strömungsgeschwindigkeits- und skalarem Gradientenfeld verhält sich wie $Sc^{1/2}$. Durch die

Viskosität des Mediums können dadurch skalare Gradienten aufgelöst werden, die 45 Mal (Wasser) kleiner als der kleinste Strömungsgeschwindigkeitsgradient sind, während diese Skalen im Fall einer Gasphasenströmung in der selben Größenordnung liegen [59]. Diesen Vorteil haben sich Dahm et al. [69] bei der Untersuchung der Durchmischung in einer turbulenten Scherschicht in Wasser zunutze gemacht. Mit einem Hochgeschwindigkeits-Datenaufnahmesystem wurden zeitaufgelöste dreidimensionale Messungen mit bis zu 140 Messebenen/Sekunde durchgeführt. Analog konnte schließlich auch das skalare Geschwindigkeitsfeld zeitaufgelöst untersucht werden [70]. Neuere Messungen von van Vliet et al. [71] nach dieser Methode befassen sich konkret mit der Feinstruktur eines solchen turbulenten Mischungsprozesses in Wasser.

2.1.2 Anwendung gekreuzter Schnittebenen

Die oben beschriebenen Verfahren zur Messung von dreidimensionalen Verteilungen jeglicher Art mithilfe von parallelen Messebenen sind durchaus in der Lage, beeindruckende Ergebnisse im experimentellen Feld der 3D-Messungen zu erzielen, vor allem da sie in der Lage sind, auch ausgedehntere Bereiche zu visualisieren. Für die Untersuchung von Gradienten in turbulenten Strömungen und Flammen weisen sie jedoch mit ihrer eingeschränkten Auflösung in der dritten Raumachse einen entscheidenden Nachteil auf.

Ein häufiger Modellierungsansatz von Flammen basiert auf dem Flamelet-Modell (s. Kap. II.1.2.6) und verschiedenen Untermodellen (siehe [72]). Diese Modelle stützen sich unter anderem auf Informationen über die räumliche Ausrichtung, den Oberflächen-Normalenvektor, dieser Flamelet-Elemente. Diese Vektorgröße gibt die instantane Ausrichtung eines Flamelet-Elementes wieder. Die Motivation, diese Größe zu bestimmen, ergibt sich aus der Beziehung zwischen der Verteilung der Orientierungen und dem Grad der Auffaltung der Flamelet-Elemente. Anhand von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (PDFs) der Oberflächen-Normalenvektoren kann somit die Auffaltung von Flamelets durch Turbulenzeinflüsse quantifiziert werden. Neben der Ausrichtung von Oberflächenelementen der Flamme sind auch Gradienten von Skalaren (Temperatur und Spezies) in der Reaktionszone und vor allem Korrelationen dieser Gradienten mit den eigentlichen Skalaren von Interesse.

Doch hier kommt das Problem bisheriger Verfahren (2D und 3D mit parallelen Ebenen) zum Tragen. In turbulenten reaktiven Gasströmungen liegen die Größenordnungen der Gradienten in der Flammenfront in einem Bereich, der mit den herkömmlichen Verfahren kaum aufzulösen ist. Dies führte zur Entwicklung einer neuen Methode, die das Problem der niedrigen Ortsauflösung

in einer Raumachse durch die Anwendung gekreuzter Lichtblätter umgeht. Zwar ist hierbei die 3D-Information nur entlang der Kreuzungslinie der Lichtblätter verfügbar, dies jedoch mit sehr hoher Auflösung, die nur durch die Auflösung des optischen Systems begrenzt wird.

Erstmals angewendet wurde das Verfahren 1997 von Bingham et al. [73] zur direkten Messung von instantanen Flamelet-Orientierungen in einer vorgemischten V-Flamme. Knaus et al. wendeten die Methodik bald darauf in einem funkengezündeten SI Motor an [72] und modifizierten den optischen Aufbau weiter, um auch Messungen im Zylinderkopf durchführen zu können [74]. Weiterführende Untersuchungen an verschiedenen Kohlenwasserstoffflammen lieferten PDFs von Flamelet-Orientierungen und zeigten, dass die Breite dieser Wahrscheinlichkeitsverteilungen für stabile Flammen systematisch größer war als für instabile Flammen [75]. Bald darauf veröffentlichten Knaus et al. auch ihre Ergebnisse aus Messungen und Fehleranalysen zur Bewertung des Verfahrens [76]. Es wurden PDFs von Projektionen auf eine einfache Messebene erstellt und mit denen einer Ein-Ebenen-Messung verglichen. In den Ergebnissen wird das Ausmaß einer Gewichtung von Orientierungen diskutiert, die sich ergibt, wenn Flamelets unterschiedlicher Orientierung die Kreuzungslinie der beiden Messebenen mit beliebiger Ausrichtung schneiden. Da sich eine Gewichtung der Wahrscheinlichkeitsdichten zeigte, wurde eine senkrechte Ausrichtung der Messlinie zur mittleren Ausbreitungsrichtung der Flamelets in Messbereich als die zu bevorzugende Anordnung empfohlen.

In etwas abgewandelter Form mit einem Schnittwinkel von nur 45° wurde dieses Verfahren auch von Sattler et al. verwendet [77] und mit simultanen Stereo-Partikelgeschwindigkeitsmessungen (SPIV) kombiniert. So konnte neben den Flamelet-Oberflächenvektoren auch das Geschwindigkeitsfeld der Reaktanten gemessen werden. Dass das Verfahren auch für quantitative Temperaturmessungen geeignet ist, zeigten wiederum Knaus et al. [78] anhand der Messung von dreidimensionalen Temperaturgradienten mittels Rayleigh-Streuung.

Für die Untersuchung der skalaren Dissipation (vgl. Kap. II.1.2.6) in einer turbulenten pilotierten Methan-Luft-Flamme nutzten Karpetsis und Barlow eine Kombination von Raman-Streuung, Rayleigh-Streuung und CO-LIF [79]. Jedoch konnte bei dem kombinierten 1D-Linienmessverfahren nur die radiale Komponente der skalaren Dissipation erhalten werden. Aus diesem Grund nahmen sich Karpetsis und Barlow in einem späteren Experiment ebenfalls der Methode der gekreuzten Messebenen an [80, 81]. Die vorhandene eindimensionale Technik wurde durch zwei gekreuzte OH-LIF-Messebenen ergänzt, wodurch neben der Bestimmung dreidimensionaler skalarer Gradienten auch die Bestimmung der instantanen Flammenorientierung und eine Abschätzung der gesamten skalaren Dissipation möglich war.

2.1.3 3D-Messungen mit einer Kamera und einem Laser

Die Anwendung dreidimensionaler Lichtschnitttechniken erfordert, wie die oben beschriebenen Verfahren beweisen, im Allgemeinen hohen technischen Aufwand. Um diesen Aufwand zu minimieren, wurden von Zimmermann im Rahmen einer Diplomarbeit [82] Experimente durchgeführt, die mit nur einem Laser und einer Kamera auskamen. Kernelement des Aufbaus war ein sphärischer Hohlspiegel mit einem Durchmesser von 250 mm, der die abbildende Optik des Kameraobjektives ersetzte. Mit einer speziellen Spiegelanordnung wurden die beiden Messebenen aus dem Messbereich gleichzeitig nebeneinander auf den Chip einer bildverstärkten Kamera abgebildet. Untersucht wurde unter anderem die laserinduzierte Fluoreszenz in einer mit Toluol versetzten turbulenten Luftströmung, sowie von OH in einer Bunsenbrennerflamme. Zur Anregung der OH-LIF wurde ein KrF-Excimerlaser eingesetzt. Der Laserstrahl mit einer Wellenlänge von 248 nm wurde durch eine runde Blende geführt, um ein homogenes rundes Strahlprofil zu erhalten. Über eine Strahlteileroptik und einen dielektrischen Spiegel sowie zwei um 45° gegeneinander gedrehte Zylinderlinsen wurden zwei sich kreuzende Laserlichtblätter erzeugt. Der schematische Aufbau des Versuches ist in Abb. III.3, die Anordnung der Spiegel nahe dem Messobjekt ist in Abb. III.4 dargestellt.

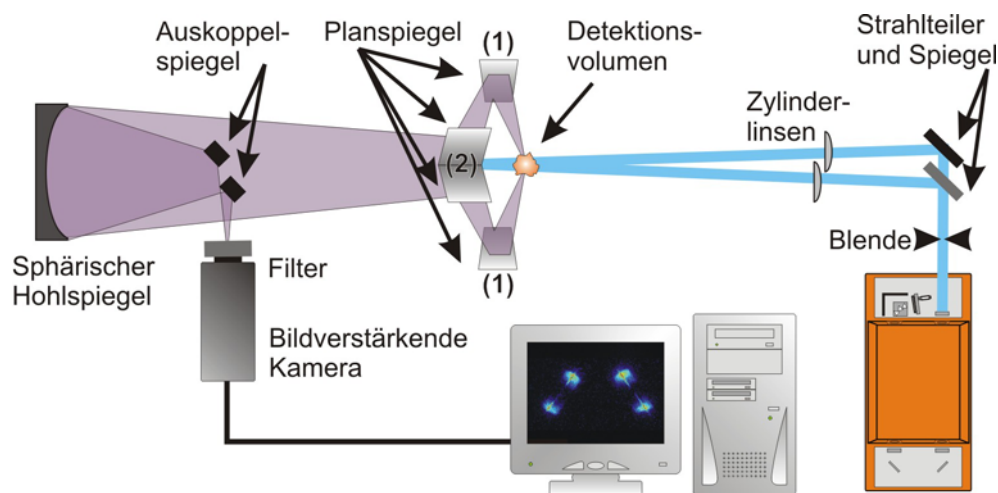


Abb. III.3: Experimenteller Aufbau zur „3D“-Messung mit einer Kamera und einem Laser. Die beiden Teilbilder werden gleichzeitig auf dem Chip der Kamera abgebildet.

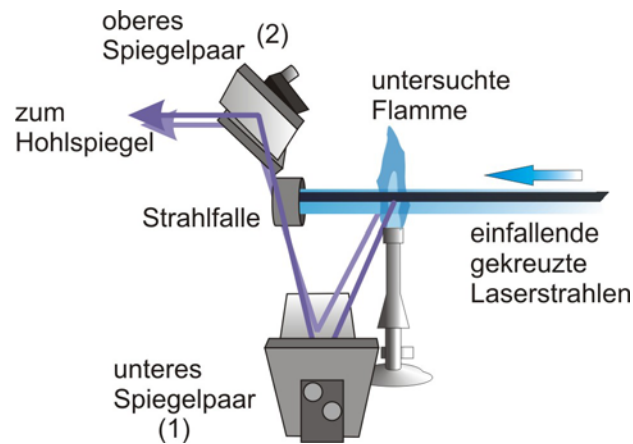


Abb. III.4: Anordnung der Spiegel in der Nähe des Messobjektes. Die unteren Spiegel (1) lenken jeweils das Signallight einer Messebene über das obere Spiegelpaar (2) zum Hohlspiegel.

Die nachfolgende Datenverarbeitung zur Generierung eines vollständigen 3D-Datensatzes umfasste mehrere Schritte. Zu diesen gehörte die Separation der beiden Teilbilder und deren gegenseitige Ausrichtung in einer 3D-Matrix anhand eines zuvor aufgenommenen Kalibrier-rasters, welches am Ort der beiden Messebenen platziert war. Weitere Schritte umfassten mehrere Korrekturen des Signals und schließlich die Interpolation der Daten in einem kompletten, wenn auch auf wenige Millimeter um die Schnittlinie begrenzten Volumenelement. Der vollständig interpolierte Datensatz erlaubt dann neben der Bestimmung von 3D-Gradienten auch die 3D-Visualisierung des untersuchten Volumenelementes (Abb. III.5).

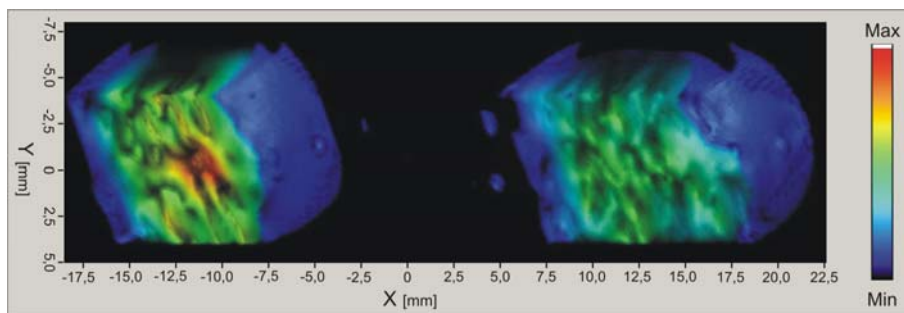


Abb. III.5: Volumenvisualisierung eines 3D-Datensatzes (vrend[©]2.1).^c Das Bild zeigt einen Ausschnitt von OH-LIF in einer Bunsenbrennerflamme. In der Mitte ist der Frischgasbereich der Flamme zu sehen, an den sich nach Außen die reaktiven Zonen der Flamme anschließen.

Eine detaillierte Beschreibung der notwendigen Bildverarbeitungsschritte ist in Hoffmann et al. (2002) [83], sowie zusammen mit einer quantitativen Bewertung des Interpolationsalgo-

^c Quelle: Zimmermann, F., Diplomarbeit, 2001, Universität Heidelberg.

rithmus in Hoffmann et al. (2004) [84] zusammengefasst. Details zur 3D-Visualisierung (*vrend*[©]2.1, IWR 2001) finden sich ebenfalls in [84], sowie speziell in Dartu (2001) [85, 86]. An dieser Stelle sei bemerkt, dass das hier verwendete Interpolationsverfahren nur einen begrenzten Bereich um die Schnittlinie rekonstruieren kann, da die Auflösung in radialer Richtung um die Kreuzungslinie rasch abnimmt. Als ein weiterer Nachteil dieser Messmethode zeigt sich auch die gleichzeitige Detektion der beiden Messebenen, da bei beiden Teilbildern auch das Signal der jeweils anderen Messebene als intensive Linie stets mitdetektiert wird. Dieser zusätzliche Signalbeitrag kann nicht vollständig herausgerechnet werden und muss entsprechend durch Ausschneiden des betroffenen Bereiches entfernt werden. Dadurch geht jedoch Information aus dem wichtigsten Teil des Bildes verloren. Neben diesen Nachteilen in der Datenauswertung sind weitere Einschränkungen, die sich durch den experimentellen Aufbau ergeben, zu beachten. Durch die Verwendung des sphärischen Hohlspiegels kommt es zur teilweise unscharfen Abbildung und zu Verzerrungen der Bildgeometrie, da nur parallele Lichtstrahlen nahe der Spiegelachse perfekt abgebildet werden. Um dieses Kriterium zu erfüllen, wurden relativ kleine Auskoppelspiegel (18 mm) verwendet. Dadurch bedingt ist die Lichtstärke des Gesamtsystems jedoch relativ gering, wodurch nur lichtstarke Prozesse (z.B. Tracer-LIF und OH-LIF) untersucht werden können.

Die in diesem Experiment erlangten Erfahrungen wurden verwendet, um zu einem Versuchsaufbau zu gelangen, in dem die Untersuchung einer turbulenten Vormischflamme mit relativ einfachen Methoden möglich ist. Es musste jedoch festgestellt werden, dass die Verwendung einer Spiegelanordnung aus den genannten Gründen für das Vorhaben ungeeignet war. Daher wurde zugunsten der Signalqualität wieder ein Ein-Laser-zwei-Kamera-System, ähnlich dem bei Knaus geschriebenen, eingesetzt. Ferner wurde auch der Versuch unternommen, die geplanten dreidimensionalen Messungen von OH-LIF mit simultanen 1D-Raman-Streulichtmessungen in der Schnittlinie der LIF-Anregungsebenen zu verbinden. Die Details und Ergebnisse sind im folgenden Kapitel IV zusammengefasst.

IV. Bestimmung von OH-Konzentrationsverteilungen und deren drei-dimensionalen Gradienten in einer turbulenten Vormischflamme

In den folgenden Kapiteln wird ein Experiment beschrieben, welches auf den zuvor erläuterten Verfahren zur 3D-Messung von Konzentrationsverteilungen mittels gekreuzter Messebenen beruht. Der Aufbau, sowie Ansätze zur Rohdaten-Korrektur werden beschrieben und schließlich die Ergebnisse der verschiedenen Auswertewege mit unterschiedlicher Zielsetzung vorgestellt.

1 Experimenteller Aufbau

Für die Messungen stand im Rahmen der Zusammenarbeit mit dem ITV^d in Stuttgart ein Brenner zur Verfügung, welcher bereits in vorangegangenen Arbeiten durch Raman-Messungen und vergleichende Simulationsrechnungen charakterisiert worden war [87]. Bei der Flamme handelt es sich um eine staukörper-stabilisierte vorgemischte Erdgas-Luft-Flamme (Abb. IV.1). Der Brenner selbst besteht aus einem Ausströmrohr mit einem Innendurchmesser von 45 mm in dem zentrisch der zylindrische Staukörper von 35 mm Durchmesser sitzt. Der Brennerkopf ist von einem weiteren Rohr mit einem Durchmesser von 200 mm umgeben, durch welches ein zusätzlicher gefilterter Luftstrom zugeführt wird. Diese Mantelströmung (Coflow) hüllt die Flamme ein und stellt somit eine definierte und staubfreie Umgebung dar. Ferner werden durch die parallele Luftströmung turbulente Scherströmungen am Rand der Flamme verhindert. Das aus dem schmalen Spalt zwischen Staukörper und Ausströmrohr austretende Erdgas-Luft-Gemisch wird durch heiße Abgase vorgeheizt, welche durch eine über dem Brennerkopf auftretende Rezirkulationszone der Flamme zum Brennermund zurücktransportiert werden, und entzündet sich dort. Die verwendeten Flüsse von Erdgas und Luft betragen zwischen 5,0

^d Institut für technische Verbrennung, Universität Stuttgart

und 5,1 m³/min Erdgas und zwischen 50 und 51 m³/min Luft, was ein ungefähres Äquivalenzverhältnis von 0,95 ergibt.

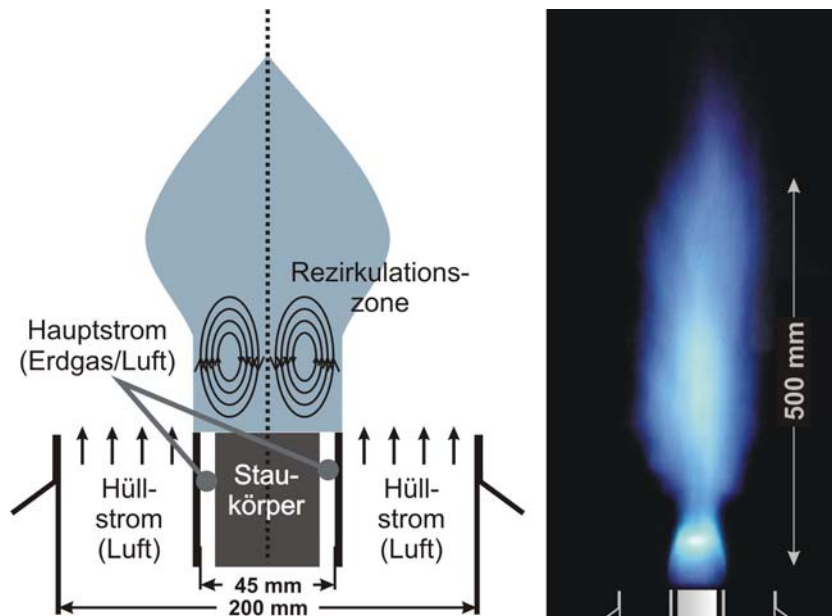


Abb. IV.1: Links: Schematischer Aufbau des Brenners, bestehend aus Ausströmröhr mit zentralem Staukörper und dem umgebenden Hüllstromrohr. Über dem Staukörper bildet sich eine Rezirkulationszone aus, welche die Flamme stabilisiert. Rechts: Fotografie des Flammeneigenleuchtens der vorgemischten Flamme.

Die turbulente Reynoldszahl der kalten Strömung am Austritt ist ca. 45 000. Die Flamme ist damit hoch turbulent. Mit zunehmender Höhe über dem Brenneraustritt ist anhand von Raman-Messungen eine beträchtliche Beimischung von Luft aus dem Coflow zu den Flammengasen zu beobachten. Die Flamme ist im statistischen Mittel radialsymmetrisch und der sichtbare Flammenkegel weist eine Höhe von etwa 50 cm auf. Die thermische Leistung dieser Flamme liegt bei ungefähr 60 kW. Um die gewünschte Messposition in der Flamme anzufahren, ist der Brenner auf einer prozessorgesteuerten Präzisions-xy-Verschiebeeinheit montiert, mit der jede gewünschte Höhe und jede radiale Position in der Flamme für die Messung zugänglich ist.

Für die geplanten Messungen wurde das am ITV Stuttgart vorhandene Raman-Messsystem um ein Messsystem für LIF-Messungen in zwei senkrecht aufeinander stehenden Ebenen erweitert (Abb. IV.2).

Letzteres bestand aus einem abstimmbaren KrF-Excimerlaser (EMG150-TMSC, Lambda Physik, 160 mJ pro Puls, 0,5 cm⁻¹ spektrale Breite) und zwei bildverstärkenden CCD-Kameras (StreakStar, LaVision). Der Laser wurde auf eine Wellenlänge von 248,45 nm abgestimmt, um den prädissoziativen und somit quenchfreien P₂(8) Übergang von OH im A-X(3,0)-Band

anzuregen (s. Kap. II.2.6.1). Der Laserstrahl wurde durch einen 50%-Strahlteiler in zwei Strahlen gleicher Intensität aufgeteilt.

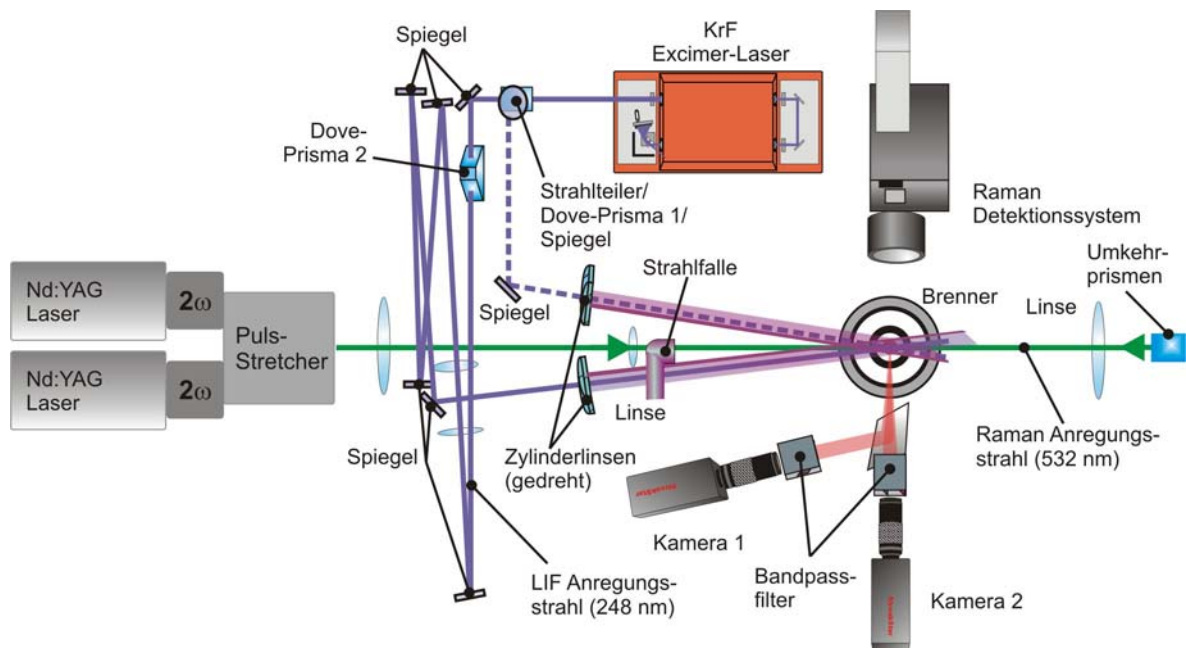


Abb. IV.2: Experimenteller Aufbau des kombinierten LIF und Raman-Systems. Die beiden LIF-Anregungsstrahlen werden über ein Prismen-Spiegel-System räumlich ausgerichtet und zeitlich verzögert.

Ein Strahl wurde mittels eines Dove-Prismas um 45° gedreht, um das rechteckige Strahlprofil des Lasers in die gewünschte Lage zu bringen. Über dielektrische Spiegel wurde dieser Strahl durch den Detektionsbereich über dem Brenner gelenkt, wobei er mit Hilfe einer ebenfalls um 45° gedrehten zylindrischen Linse ($f = 1000 \text{ mm}$) vor dem Messvolumen zu einem ca. $400 \mu\text{m}$ dünnen Laserlichtblatt geformt wurde. Der zweite Teilstrahl wurde ebenfalls durch ein Dove-Prisma gelenkt, wodurch ein unabhängiges Justieren der beiden Strahlen möglich war.

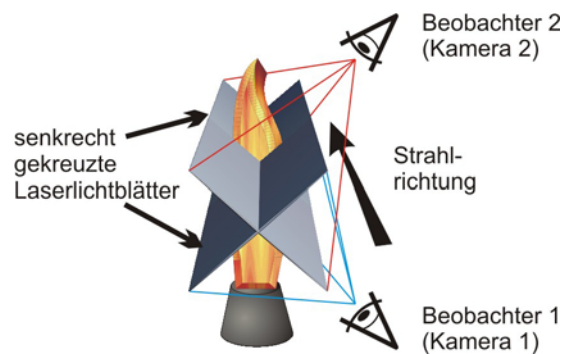


Abb. IV.3: Anordnung der gekreuzten Messebenen über der Flamme. Jede Ebene wird jeweils von einer Kamera beobachtet.

Durch eine Drehung von 45° in die entgegengesetzte Richtung konnte somit eine Überlagerung der beiden Teilstrahlen im Messbereich mit dem gewünschten Winkel von 90° erreicht werden.

Dadurch ergab sich, wie in Abb. IV.3 dargestellt, eine Kreuzungslinie, die senkrecht zur Brennerachse orientiert war. Der zweite gedrehte Strahl wurde ferner über eine Verzögerungsstrecke, bestehend aus mehreren dielektrischen Spiegeln und einer Teleskopanordnung aus zwei sphärischen Linsen ($f=300$ mm, 200 mm) zur Korrektur der Strahldivergenz, zeitlich verzögert bevor er durch den Detektionsbereich gelenkt wurde. Das Laserlichtblatt wurde hier durch eine Kombination aus einer Zylinderlinse ($f=1000$ mm) zur Fokussierung des Lichtblattes (Dicke 200 μm) und einer um 90° gedrehten Zylinderlinse ($f=2000$ mm) zur Stahlkorrektur geformt. Durch die Verzögerungsstrecke (Gangunterschied ca. 23 m) wurde eine zeitliche Verzögerung der beiden Teilstrahlen von ungefähr 75 ns erreicht, was eine unabhängige Detektion jedes Teilstrahls mit dem jeweiligen Kamerasystem erlaubte. Die Kameras, ausgerüstet mit achromatischen UV-Objektiven (Halle, $f=300$ mm, $f_\# = 5$) und 4-fach Reflex-Bandpassfiltern (295 ± 10 nm, Laser Optik), waren seitlich des Brenners jeweils oberhalb und unterhalb des Brennerkopfes senkrecht zu den entsprechenden Lichtblattebenen angebracht. Während die obere Kamera die Ebene des verzögerten Laserstrahls direkt aufnahm, betrachtete die untere Kamera die entsprechende zweite Ebene über einen UV-optimierten Al-Spiegel (100×100 mm). Die relativ schmalbandigen Bandpassfilter (± 10 nm) erlaubten die nahezu selektive Detektion der OH-LIF-Emission aus dem $A-X(3,2)$ -Band von OH bei 295 nm. Auf den Einfluss benachbarter Emissionsbänder wird im folgenden Kapitel näher eingegangen.

Das eingangs erwähnte Raman-Messsystem wurde eingesetzt, um simultan innerhalb der Schnittlinie über eine begrenzte Strecke 1D-Ramandaten zu liefern. Die Anregung erfolgte mittels zweier Nd:YAG-Laser (BMI 5022 DNS 10, 600 mJ, 6 ns Puls), deren Pulse über eine Verzögerungsstrecke gestreckt und zu einem einzigen Riesenpuls von 35 – 40 ns gekoppelt wurden, um die Ionisation des Gases im Detektionsvolumen zu unterbinden. Über einen Achromaten (LINOS, Apertur 210 mm, $f_\# = 4$) wurde das Signallicht auf ein Spektrometer (ARC, $f=300$ mm, $f_\# = 4$, Schlitzweite 500 μm , 600 Linien/mm Gitter) gebündelt und das Spektrum mit einer CCD-Kamera aufgenommen. Aus dem Spektrum lassen sich die Konzentrationen der Majoritätenspezies in der Flamme bestimmen, sowie aus der Summe der Konzentrationen, unter der Annahme des Gesetzes idealer Gase, die lokale Temperatur berechnen. In einem beschränkten Messbereich ist es so prinzipiell möglich, das Fluoreszenzsignal aus den LIF-Messungen zu quantifizieren und OH-Radikalkonzentrationen zu berechnen.

Die Umsetzung dieses Ansatzes ist jedoch sehr schwierig, da eine exakte Überlagerung der beiden LIF-Laseranregungsstrahlen mit dem Raman-Anregungsstrahl innerhalb der benötigten Präzision von rund 100 μm bei einem Experiment dieser Größe schwer zu realisieren ist. Eine exakte Strahlführung ist über die großen Distanzen ohne mechanische Kopplung aller Teile (d.h. Aufbau der optischen Elemente auf ein einziges Trägerelement) nicht möglich. Auf dieses Problem wird unter anderem im folgenden Kapitel „*Problemquellen und Störeinflüsse*“ näher eingegangen. Ein weiterer, neuer Ansatz zur Quantifizierung, der im Rahmen dieser Zusammenarbeit entwickelt und veröffentlicht wurde, wird gesondert in Kapitel IV.3.2 beschrieben.

2 Problemquellen und Störeinflüsse

2.1 Laserintensitätsverluste durch optische Elemente

In Kapitel III.2.1.3 wurde ein System beschrieben, aus dem Erkenntnisse gewonnen worden waren, die in verbesserter Weise in dem hier geschilderten Projekt umgesetzt werden sollten. Jenes Projekt benutzte zur Erzeugung der gekreuzten Laserstrahlen lediglich einen kleinen runden Bereich des Laserprofils, der durch eine Irisblende selektiert wurde. Die unterschiedliche „Drehung“ der Laserlichtschnitte wurde lediglich durch die Verwendung um die Strahlachse gedrehter Zylinderlinsen erreicht [82, 83]. Dies versprach im aktuellen Fall jedoch keine günstigen Bedingungen. Durch die starke Reduzierung auf einen kleinen Strahldurchmesser entstehen nur sehr schmale Laserlichtbänder, die eine Justage des Kreuzungsbereiches erschweren und in Verbindung mit dem Winkel zwischen den beiden Einfallrichtungen entsteht nur ein sehr kurzer Kreuzungsbereich. Zudem wird die Strahlqualität über die lange Strahlstrecke noch durch Divergenzeffekte negativ beeinflusst, die bei sehr schmalen Strahlen stärker ins Gewicht fallen.

Daher versprach die Anwendung der beiden Dove-Prismen zur Drehung der Strahlprofile eine einfache Methode, die Laserstrahlen unabhängig zu justieren. Jedoch muss man bei dieser Methodik bedenken, dass auch die unvergüteten Oberflächen der Prismen wie auch sonstige optische Elemente im Strahlengang (Korrekturlinsen) zu Energieverlusten bei den Laserstrahlen führen. So zeigte sich, dass beim beschriebenen Aufbau im Falle des direkten Strahles nur ca. 35%, im Falle des verzögerten Strahles sogar nur 15% der ursprünglichen Laserenergie das Messvolumen erreichen. Somit gehen etwa 50% der Energie des Lasers an optischen Elementen

verloren. Im vorliegenden Experiment wurde versucht, durch korrigierende Optik einen optimalen Mittelweg zwischen Strahlenergie und Strahlqualität zu finden.

2.2 Spektrale Strahlungsdichte

Die Laserenergie, genauer die spektrale Strahlungsdichte, spielt u.a. auch eine Rolle bei der Quantifizierung der gemessenen OH-Konzentrationsverteilungen. Bei der Anregung von OH im $A-X(3,0)$ -Band mit Hilfe eines KrF-Excimerlasers bei 248 nm wurden verschiedene photochemische Effekte bei hoher spektraler Strahlungsdichte beobachtet [88].

2.2.1 Photodissoziation

Die Photodissoziation von Wasser, ausgelöst durch starke Lasereinstrahlung im Messvolumen, kann, wie von Nguyen et al. beobachtet, das detektierte OH-LIF-Signal nahezu verdoppeln. Laut ihren Ergebnissen kann bei Strahlungsdichten über $200 \text{ MW}/(\text{cm}^2 \text{ cm}^{-1})$ eine signifikante überschüssige OH-Konzentration nach einer Zeitspanne von 300 – 400 ns nach dem Laserpuls beobachtet werden. Um diesen Effekt in der vorliegenden Arbeit auch bei niedrigeren Strahlungsdichten zu umgehen wurde darauf geachtet, das Signal innerhalb eines Zeitraumes von etwa 200 ns nach dem Laserpuls zu detektieren.

2.2.2 Grundzustandsdepopulation (Bleichen)

Ein zweiter Effekt, der bei der Anregung bei 248 nm beobachtet wurde, ist der des Bleichens des Grundzustandes. Für Laserbestrahlungsdichten über $20 \text{ MW}/(\text{cm}^2 \text{ cm}^{-1})$ wurden Bleich-effekte beobachtet, die auf eine verstärkte Entvölkerung des Laser-gekoppelten Grundzustandes hindeuten. Diese Effekte vermindern das detektierte Signal um rund 25% für Laserbestrahlungsdichten größer als $100 \text{ MW}/(\text{cm}^2 \text{ cm}^{-1})$ [88]. Im vorliegenden Experiment wurde die spektrale Strahlungsdichte der beiden Lichtblätter im Fokus bestimmt. Im Falle des weniger fokussierten direkten Strahles lag diese bei lediglich $35 \text{ MW}/(\text{cm}^2 \text{ cm}^{-1})$, weshalb nur mit einem sehr geringen Fehler zu rechnen ist. Der stärker fokussierte verzögerte Strahl wies aufgrund der eingebauten Korrekturoptiken eine höhere spektrale Strahlungsdichte von $85 \text{ MW}/(\text{cm}^2 \text{ cm}^{-1})$ auf. Hier dürfte der Bleicheffekt einen geschätzten Fehler von ca. 20% verursachen. Da der Effekt die Kalibriermessungen jedoch in gleichem Maße beeinflusst, kann der Einfluss hier

vernachlässigt werden, solange sich die spektrale Strahlungsdichte über den beobachteten Messbereich nicht ändert, d.h. solange keine signifikante Absorption des Laserstrahles auftritt.

2.3 Spektrale Reinheit

Im Weiteren ist als Voraussetzung für eine erfolgreiche Quantifizierung des LIF-Signals die spektrale Reinheit der detektierten Emission notwendig. Da es sich beim angeregten Übergang um einen prädissoziativen Übergang von OH handelt, kann man die Vereinfachung anwenden, dass der einzige Einfluss der Temperatur über die Boltzmann-Verteilung des Grundzustandes in die Messung mit eingeht, der Einfluss von Quenching kann vernachlässigt werden (s. dazu auch Kap. II.2.6.2). Im vorliegenden Fall gehen wir ferner davon aus, dass ein Vibrationsenergieübertrag in benachbarte Zustände, für welche die Annahme der schnellen Prädissoziation und damit der Quenchfreiheit nicht mehr zutrifft, nur in geringem Maße auftritt. Zu diesem Zweck wurde der detektierte Übergang $A-X(3,2)$ mittels schmalbandiger Reflexions-Bandpassfilter (295 ± 10 nm) detektiert. Schmalbandigere Filter (z.B. ± 5 nm) unterdrückten das emittierte Licht zu stark, als dass eine brauchbare Messung möglich gewesen wäre. Tatsächlich erfasst der Transmissionsbereich der verwendeten Bandpassfilter jedoch auch Teile des benachbarten Übergangs $A-X(2,1)$, welcher knapp 30% zur detektierten Gesamtsignalstärke beitrug (s. Kap. II.2.6.1 Abb. II.6). Nimmt man eine Variation der Signalstärke aus diesem Übergang von etwa 30% aufgrund von Stoßlöschung an, so beläuft sich der dadurch entstandene Gesamtfehler auf etwa 7%.

2.4 Polarisation der laserinduzierten Fluoreszenz

Bei der Anregung der OH-Fluoreszenz spielen auch die Polarisations-eigenschaften des Lasers eine entscheidende Rolle, da Fluoreszenz aus einem angeregten Zustand detektiert wird, welcher durch die Absorption eines Laserphotons geschaffen wurde [89]. Ist der anregende Laser polarisiert, was bei den hier verwendeten Excimerlasern zutrifft, so ist gewöhnlich die resultierende Fluoreszenz ebenfalls polarisiert. Dies rührt daher, dass im Moment der Anregung bevorzugt die Moleküle absorbieren, deren Übergangsdipolmoment parallel zum Polarisationsvektor der Laserstrahlung liegt [90]. Dieses Übergangsdipolmoment steht, abhängig vom elektronischen Übergang, entweder parallel oder senkrecht zu den Symmetrieachsen des Moleküls. Folglich ist aber auch das von diesen ausgerichteten Molekülen emittierte Licht polarisiert. Da Ausbreitungsrichtung und Polarisationsvektor des Lichtes senkrecht aufeinander

stehen müssen, bedeutet dies aber auch, dass das ausgestrahlte Licht eine anisotrope Abstrahlcharakteristik besitzt. Dies wirkt sich besonders aus, wenn bei schmalbandiger Detektion polarisierende Elemente (z.B. Gitter) im Detektionspfad eingesetzt werden.

Zusätzlich kommt es noch zu einer stoßbedingten Depolarisation der angeregten Moleküle [91, 92]. Dieser relativ schwache Prozess steht jedoch in Konkurrenz mit Quenching und Schwingungs- bzw. Rotationsenergietransfer. Der Einfluss der stoßbedingten Depolarisation wurde daher vernachlässigt.

Der Einfluss der Polarisation der Fluoreszenz wird im hier beschriebenen Experiment in der Detektionseffizienz mitberücksichtigt und wird durch die Kalibriermessungen mit gleichem optischem Aufbau eliminiert.

2.5 Frequenzstabilität des Excimerlasers

Nicht zuletzt spielt auch die Abstimmgenauigkeit des Excimerlasers eine Rolle bei der Quantifizierung. Die spektrale Breite der Laserstrahlung beträgt rund $0,5 \text{ cm}^{-1}$ und überdeckt damit die volle Breite des Anregungsüberganges. Dennoch ergibt sich dabei ein Problem: Die Abstimmung des Excimerlasers ist stark von Temperaturschwankungen der Umgebung abhängig, da die Abstimmung über ein mechanisch bewegtes sehr empfindliches Gitter erfolgt. Das hier beschriebene Experiment bzw. der verwendete Laser musste im Sommer in unklimateilerten Räumen am ITV in Stuttgart betrieben werden, was zu einem ständigen Driften des Lasers von der Anregungslinie führte. Da die Abstimmung von Hand erfolgte und nur korrekt an einer Kalibrierflamme durchgeführt werden konnte, ergeben sich mögliche Fehler bei einem nachträglichen Nachkorrigieren der Laserlinie. Um diesem Fehler so gut wie möglich Rechnung zu tragen, wurden während der Auswertung der Daten aus den mittleren Intensitäten der einzelnen Messserien Korrekturfaktoren bestimmt und die Serien entsprechend nachkorrigiert.

2.6 Strahlwege der Laserstrahlen

Die bereits oben erwähnten langen Strahlwege bergen ein weiteres Problem. Da die räumliche Ausdehnung des Experimentes, in unserem Fall über drei getrennte Räume, es nicht erlaubte alle optischen Elemente mechanisch miteinander zu koppeln, d.h. auf durchgehenden Trägerelementen zu montieren, führten auch leichteste Vibrationen der tragenden Konstruktion zu unkontrollierten Ablenkungen der Laserstrahlen. Auch wenn sich die daraus ergebenden Abweichungen im Messvolumen nur in Bereichen von wenigen hundert Mikrometern bewegen,

so ist diese Größenordnung sowohl für die angestrebten Messungen als auch schon für die Überlagerung dreier Laserstrahlen, die unabhängig voneinander vom gewünschten Strahlweg abweichen, problematisch. Die Lage der Schnittlinie der beiden LIF-Anregungslaserlichtblätter lässt sich mit Bildverarbeitungsverfahren und selbst entworfenen Suchroutinen ermitteln, sofern sich die Schnittlinie innerhalb eines festgesetzten Bildbereiches bewegt (s. Kap. IV.3.1). Die Bilder können somit mit einem gewissen Mehraufwand in der Auswertung größtenteils korrigiert werden. Die Ergebnisse aus den simultanen Raman-Messungen liefern Informationen nur in einem sehr kleinen räumlichen Bereich. Diese Informationen sollten eingesetzt werden, um das erhaltene OH-LIF-Signal zu quantifizieren. Da es sich um Linien-Messungen handelte, stammten die Daten aus einem linearen Bereich von ca. 3,5 mm. Die darin enthaltene Information über das Temperaturprofil ist allerdings zu gering, um sie mit den neu orientierten Bildern der LIF-Messungen zu überlagern. Es konnten exemplarische Datensätze selektiert werden, bei denen eine nahezu korrekte Ausrichtung aller drei Strahlen wahrscheinlich ist. Da dies aber nicht garantiert werden kann und das Experiment auf eine große Datenmenge als Eingabe für Korrelationsanalysen und Simulation abzielte, werden in dieser Arbeit in einem späteren Abschnitt (Kap. IV.4.1) nur wenige Ergebnisse präsentiert, welche auf dieser Methode beruhen und diese nur verdeutlichen sollen. Dieser Umstand und die Notwendigkeit eine alternative Quantifizierungsmethode zu finden, führte schließlich zur Entwicklung eines neuen Verfahrens, welches sich simulierter Daten bedient, um das gemessene LIF-Signal zu quantifizieren (modellgestützte Datenanalyse). Auf dieses neu entwickelte Verfahren [93] wird im Kapitel IV.3.2 detaillierter eingegangen. Der Umstand, dass für dieses Experiment ein prädissoziativer Übergang von OH gewählt worden war, erleichterte über dies die Quantifizierung, da Quenchingprozesse in diesem Fall keine Beachtung finden (s. Kap. II.2.6.2).

3 Auswerteverfahren zur Bestimmung von OH-Konzentrationen und deren 3D-Gradienten

Die Verarbeitung der Rohdaten erfordert mehrere Einzelschritte, die im Folgenden, eingeteilt in drei Hauptschritte, erläutert werden.

3.1 Auswertung der Rohdaten

Neben den eigentlichen Messungen zur Bestimmung der OH-Verteilungen waren weitere Messungen notwendig, um die aufgenommenen Bilder zum einen örtlich zu kalibrieren, zum anderen auch eine spätere Quantifizierung zu ermöglichen.

Eine korrekte Überlagerung der beiden Bilder von oberer und unterer Kamera im Schnittbereich erfordert eine Skalierung sowohl in Bezug auf die räumliche Ausdehnung, wie auch in Bezug auf die Intensitätsskalierung der beiden korrelierten Bilder. Ersteres wird automatisch von der Bildverarbeitungssoftware anhand eines zuvor abgelichteten Maßstabes übernommen (Abb. IV.4).

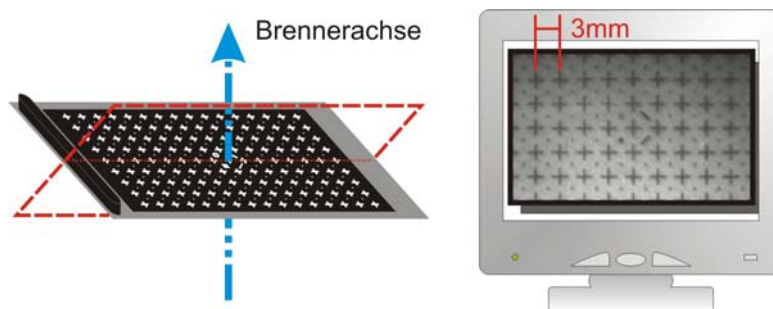


Abb. IV.4: Links: Schematische Darstellung des verwendeten Maßstabes in einer der beiden Messebenen. Markierte Referenzpunkte ermöglichen eine Zuordnung zu Punkten im 3D-Raum und die Ausrichtung der beiden aufgenommenen Bilder gegeneinander. Rechts: reale Aufnahme des Rasters nach Entzerrung durch die Software.

Mit seiner Hilfe wurde ein Fixpunkt im System festgelegt, an dem eine räumliche Ausrichtung der Messungen möglich war. Seine gekreuzten Flächen lagen genau in den Ebenen der Laserlichtblätter. Auf der Oberfläche war ein Kalibriermuster (Kreuzraster) aufgebracht, das neben der Festlegung des Fixpunktes auch die automatische softwaregestützte Korrektur von Verzerrungen durch die abbildende Optik oder den Kamerachip und die Kalibrierung der Dimensionen und Ausrichtung der beiden Kamerabilder ermöglichte. Der Fixpunkt war so gewählt, dass er eine Bestimmung der Höhe über Brenneraustritt und des radialen Abstandes von der Brennerachse erlaubte.

Üblicherweise reicht die Korrektur anhand des Maßstabes für eine perfekte Überlagerung zweier Bilder vollkommen aus. Da in diesem Falle jedoch zusätzlich Verschiebungen durch Vibrationsstörungen zu korrigieren waren (s. Kap. IV.2.6), wurde mit einem später eingeschobenen Zusatzschritt in der Auswertung, der weiter unten erklärt wird, nachkorrigiert.

Zunächst wurde das zeitlich invariante Intensitätsprofil des Lasers korrigiert, welches sich durch eine, hier horizontale, Streifenstruktur im Rohbild bemerkbar macht. Die Korrektur dieser Streifen fand anhand von Intensitätsprofilen statt, die aus LIF-Messungen in einem homogenen mit Toluol versetzten Luftstrom gewonnen wurden. Die breitbandige Emission von Toluol nach Anregung im UV erlaubte es, das Toluol-LIF-Signal mit guten Intensitätsausbeuten ohne Veränderung des eigentlichen Aufbaus, d.h. trotz der Reflex-Bandpassfilter, zu detektieren. Da ein homogener Luftstrom nicht über den gesamten Bildbereich zu erzielen war, wurden die Intensitätsprofile in einem Teilbereich des beobachteten Bildes aufgenommen und zur Korrektur der später bestimmten LIF-Signalintensitäten entlang des Laserstrahls angewendet. Durch eine Normierung der Maxima in den Referenzintensitätsverteilungen auf den Wert Eins und Dividieren der gemessenen OH-LIF-Intensitätsverteilungen durch diese normierte Referenz, lassen sich die Intensitätsvariationen aufgrund des inhomogenen Excimerstrahlprofils ausgleichen.

Um eine Quantifizierung der OH-LIF-Intensitäten zu ermöglichen, musste schließlich ein bekanntes, gut charakterisiertes Objekt mit demselben optischen Aufbau vermessen werden. Im Falle dieses Experimentes diente dazu eine vorgemischte flache Flamme (McKenna-Standardbrenner), die in der Literatur gut charakterisiert ist [94, 95]. Das bei definiertem CH_4 /Luft-Fluss in einer definierten Höhe gemessene gemittelte OH-LIF-Signal wird als Referenzsignal für die Quantifizierung verwendet (s. auch Kap. IV.3.2). Zur Messung am McKenna-Brenner wurde nur die obere Kamera eingesetzt, da diese als einzige freie Sicht auf die Messposition hatte. Für die untere Kamera war die nur 15 mm über der Brennermatrix liegende Messposition optisch nicht zugänglich, da das Brennergehäuse selbst die Sicht versperrte.

Da zwei unabhängige Kamerasysteme für die Bildaufnahme der LIF-Messungen verwendet wurden, war es zudem notwendig, die Bilder der beiden Seiten in ihrer Intensität aufeinander abzugleichen. Zu diesem Zweck war eine stabile, laminare Flamme, wie die eines stabilisierten Bunsenbrenners (modifizierter Taranbrenner), am besten geeignet. Die Modifizierung des Brenners bestand in einer Verkürzung der Baulänge, was ein direktes Anbringen über dem eigentlichen Brenner gestattete. Somit konnte ebenfalls der unveränderte Messaufbau verwendet werden. An einer stabilen Flamme ohne Coflow wurden dann OH-LIF-Messungen durchgeführt, aus deren mittlerem Intensitätsverhältnis im Bereich der Schnittlinie ein Korrekturfaktor für eine Kamera bestimmt werden konnte. Somit wurde die Intensität der oberen Kamera auf die Intensität der unteren Kamera angeglichen. Dies musste folglich auch mit den Messergebnissen

im McKenna-Brenner geschehen, ehe diese zur späteren Kalibration der LIF-Signale auf Standardbedingungen hinzugezogen werden konnten.

Während der Auswertung der Daten zeigte sich, dass es durch thermische Einflüsse zu einem Driften des Lasers von der Anregungslinie Intensitätsschwankungen zwischen den einzelnen Messserien gekommen war. Ferner war es nicht immer möglich, bei einem zwischenzeitlichen Nachstimmen des Lasers zwischen Messserien, was ohne Justierflamme (Bunsenbrenner) erfolgen musste, die optimale Anregungswellenlänge zu treffen. Daher wurde anhand der gemessenen Daten die Intensität nachkorrigiert. Da zu jeder Messhöhe und radialen Position mehrere Messserien vorhanden sind, lassen sich Intensitätsschwankungen anhand der gemittelten Intensitäten der einzelnen Serien leicht erkennen. Unter Berücksichtigung der Variationen, die durch Veränderungen der Messposition auftreten und unkorrigiert bleiben sollen, lässt sich durch Vergleich der Signalintensitäten eine Tendenz bestimmen, deren Schwankungen untereinander weitestgehend korrigiert werden können. Ferner wurden dabei auch Schwankungen der Laserintensität mit eingerechnet. Simultane Messungen der Laserenergie zeigten zwar im Verlauf einer einzelnen Messserie keine bemerkenswerten Schwankungen ($< 5\%$), ein allmähliche Energieabnahme im Verlauf eines Messtages wurde jedoch in der Auswertung berücksichtigt.

Bei der Auswertung der Daten war der störende Einfluss von Signalrauschen, bedingt durch sehr schwaches Signallicht, nicht ohne weitere Eingriffe zu unterdrücken. Da der Einsatz linearer und nicht-linearer Filter mit einem starken Verwaschen von Strukturen bzw. einer starken Bildung von Artefakten einhergeht, wurde auf einen Fourier-Filter zurückgegriffen, Dieser ist geeignet, nur Intensitätsschwankungen mit hoher Frequenz zu unterdrücken, entsprechend einem Tiefpassfilter. Es war so eine Reduzierung des Rauschens möglich, ohne Information innerhalb des möglichen Auflösungsvermögens zu zerstören.

Der letzte Verarbeitungsschritt bei der Vorbereitung der Rohdaten war die Korrektur der räumlichen Ausrichtung der Bildpaare. Wie in Kapitel IV.2.6 erläutert, bedingten geringfügige Vibrationen des Aufbaus durch die langen Strahlwege eine erst in den Ergebnissen wahrnehmbare Verschiebung der Laserlichtschnittebenen gegeneinander. Da eine Korrektur für die gewünschten Resultate unerlässlich war, wurde ein Ansatz zur Korrektur unternommen, der sich auf die Informationen stützt, welche die Bilder selbst zur Verfügung stellen. Beiden Bildern ist eine Bildzeile gemeinsam, nämlich die, in der sich die Laserlichtblätter überkreuzen. Zu beachten ist jedoch, dass die Schnittlinie nicht wie im Ein-Kamera-Experiment in Kapitel III.2.1.3 an ihrer höheren Signalintensität zu erkennen ist, da die Laserstrahlen das

Detektionsvolumen zeitversetzt passierten. Jedoch stimmt das horizontale Intensitätsprofil dieser beiden Bildzeilen im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Diese gemeinsame Information lässt sich verwenden, um die Position der Schnittlinie nachträglich zu bestimmen. Durch zeilenweisen Vergleich der Signalintensitätsprofile in Strahlrichtung in beiden Bildern lässt sich für jedes Bild eine Zeilenkombination mit der geringsten Abweichung herausfinden. Dies geschieht, indem der mittlere Wert der Abweichungen in einer Zeilenkombination in eine Matrixzelle geschrieben wird, die der jeweiligen Verschiebung der Bilder gegeneinander entspricht. Die beste Zeilenübereinstimmung lässt sich dann anhand der Koordinaten des Minimalwertes in der Matrix bestimmen. Berücksichtigt wurden dabei nicht nur Verschiebungen in Richtung der Normalen der Messebenen, sondern auch geringfügige Verschiebungen in Richtung der Strahlausbreitung. Dazu wurde für jedes Zeilenpaar zuerst auf eine Verschiebung in Strahlrichtung korrigiert, bevor der Vergleich der Zeilen stattfand. Um Fehlzuordnungen auszuschließen, wurde der Suchbereich auf ± 10 Pixel in Normalenrichtung eingeschränkt. Verschiebungen von mehr als ± 7 Pixeln in Normalenrichtung wurden verworfen. Somit ergab sich eine Auswahl an Bildpaaren, deren nachzukorrigierende Verschiebung innerhalb eines vertretbaren Rahmens lag und bei dem keine Winkelabweichung berücksichtigt werden musste.

3.2 Quantifizierung mittels simulierter LIF-[OH]-Korrelationen

Aus der zuvor erwähnten Situation, dass ein zuverlässiger Überlapp von LIF- und Raman-Messbereich nicht gewährleistet war und somit keine Temperaturdaten für eine Quantifizierung zur Verfügung standen, entstand ein neuer Ansatz für die direkte Berechnung von absoluten OH-Konzentrationen aus gemessenen OH-LIF-Intensitäten. Aufbauend auf Simulationen wurde in Zusammenarbeit mit R. Schießl/U. Maas (ITV, Universität Stuttgart; ITT, Universität Karlsruhe) eine Methodik entwickelt, die es erlaubt, im Einzelschuss-Experiment in einer turbulenten vorgemischten Erdgas/Luft-Flamme absolute OH-Konzentrationen zu messen [93]. Diese neuartige Methodik stützt sich auf eine Korrelationsanalyse von OH-Konzentrationen und OH-LIF-Intensitäten aus detaillierten numerischen Simulationen für die Bedingungen der untersuchten Flamme. Die numerische Simulation wird dabei verwendet, um LIF-Intensitäten vorherzusagen. Es werden sowohl die thermochemischen Zustände des Methan/Luft-Verbrennungssystems, wie auch die LIF-Spektroskopie von OH modelliert. Dabei zeigt sich eine scharfe Korrelation zwischen LIF-Signal (hier bei der Anregung im $A-X(3,0)$ -Band) und der OH-Konzentration.

Dies erlaubt schließlich, gemessene LIF-Intensitäten absoluten OH-Konzentrationswerten zuzuordnen. Das Verfahren hat zudem im vorliegenden Fall den Vorteil, dass die Korrelation einen linearen Verlauf aufweist, was eine Umrechnung sehr einfach macht. Selbst über einen weiten Bereich von abweichenden Bedingungen, wie stationären und instationären laminaren Flammen mit unterschiedlicher Streckung, unterschiedlichen Modellen für molekularen Transport oder verschiedenen Graden von Wärmeverlust, ist ein deutlicher Bezug zwischen Messgröße (LIF-Intensität) und Zielgröße (OH-Konzentration) zu erkennen.

Ein allgemeines Problem bei der Messung von absoluten Konzentrationen ist, dass die Beziehung zwischen der untersuchten Größe (gemessene LIF) und der eigentlichen Zielgröße (Spezieskonzentration) im allgemeinen Fall komplex ist (vgl. Kap. II.2.5). So spielen Einflüsse durch andere Spezies eine bedeutende Rolle. Zu den Einflüssen auf das messbare Signal gehören vor allem die stoßbedingte Deaktivierung des angeregten Zustandes (Quenching, s. auch Kap. II.2.6.2) oder die Druckverbreiterung von Absorptionslinien. Ferner spielt die Temperatur eine wichtige Rolle, da sie über die Temperaturabhängigkeit der Besetzung des Grundzustandes (Boltzmann) Einfluss auf das detektierte Fluoreszenzsignal hat. Die Intensität der Fluoreszenz S_F ist somit formell eine Funktion $f(p, T, x_i)$ des Druckes p , der Temperatur T und des Molenbruches x_i der Spezies i . S_F ist damit keine einfache Funktion einer einzelnen Variablen. Es stehen folglich nicht genügend Informationen zur Verfügung, um irgendeine der enthaltenen Größen zu separieren. Die Gleichung

$$S_F - f(p, T, x_i) = 0 \quad (IV.1)$$

ist somit unterbestimmt und nicht lösbar. Das Problem lässt sich jedoch eingrenzen, wenn man berücksichtigt, dass die unterschiedlichen Komponenten nicht voneinander unabhängig sind. Es existieren Beziehungen, die Konzentrationen verschiedener Spezies miteinander und Spezieskonzentrationen mit der Temperatur in Bezug bringen. In der Praxis existiert also nur ein Teil der möglichen Linearkombinationen an beeinflussenden Parametern. Diese möglichen Situationen lassen sich durch die Simulation ermitteln.

In einem breiten Spektrum von numerischen Simulationen sammelte R. Schießl eine große Zahl von Zustandsvektoren (Kombinationen von p , T und x_i), wie sie in einer vorgemischten turbulenten Methan/Luft-Flamme auftreten können. Die Simulationen umfassten laminare

eindimensionale Flammen mit unterschiedlicher Streckung, unterschiedlichem Brennstoff-Luft-Verhältnis und spezifischen Enthalpien. Ferner wurden instationäre Effekte berücksichtigt, die durch die Zumischung von Luft in die Flammengase hervorgerufen werden, indem zusätzlich Zustandsvektoren aus homogenen Reaktorrechnungen gewonnen wurden. Für diesen Fundus an möglichen Zustandsvektoren wurden schließlich OH-LIF Signale nach dem folgenden Ansatz berechnet:

Ein gemessenes Fluoreszenzsignal S_F von OH kann grundsätzlich (s. auch Kap. II.2.6) durch die folgende Proportionalität beschrieben werden

$$S_F \sim I_{\text{Laser}} [\text{OH}] f_B(T) \sigma_{\text{eff}} A_{21} / (A_{21} + Q(p, T, x_i) + P) \quad (\text{IV.2})$$

Die Koeffizienten A_{21} und P sind spezifisch für das Anregungs-/Detektionsschema aber unabhängig von den Größen p , T und x_i . Dagegen stehen der Absorptionsquerschnitt σ_{eff} und die Quenchrage Q in relativ komplexem Zusammenhang mit p , T und x_i . Im vorliegenden Experiment wurde ein prädissoziativer Zustand angeregt, wodurch die Beziehung $A_{21}, Q \ll P$ zum Tragen kommt (vgl. Kap. II.2.6.1) und die obige Gleichung sich vereinfacht zu

$$S_F \sim I_{\text{Laser}} [\text{OH}] f_B(T) \sigma_{\text{eff}} A_{21} / P \quad (\text{IV.3})$$

Obwohl wegen des hier verwendeten Übergangs Stoßlöschung vernachlässigt wurde, ist diese Methode nicht auf prädissoziative LIF beschränkt. Bei Verwendung nicht-prädissoziativer Übergänge müssen im Modell jedoch auch Einflüsse durch Stoßlöschung und deren Temperaturabhängigkeit berücksichtigt werden.

Um nun alle rein experimentellen Größen, die auf Eigenschaften des Messsystems beruhen, zu eliminieren, wird das gemessene LIF-Signal von OH (S_F) in Einheiten eines normalisierten Signals ($S_{F(\text{Standard})}$) ausgedrückt, welches durch Kalibriermessungen in einem standardisierten Kalibrierbrenner (McKenna [95], s. Kap. IV.3.1) mit bekannter Laserintensität, Temperatur und bekannten Speziesmolenbrüchen erhalten wird. Dieses normalisierte, dimensionslose Signal wird im Folgenden mit LIF_{OH} bezeichnet.

Es gilt

$$LIF_{OH} = S_F / S_{F(\text{Standard})} \quad (IV.4)$$

Damit ist das Signal LIF_{OH} nur noch eine Funktion von [OH] und T . Größen wie die Laserintensität, die Detektionseffizienz und konstante Terme wie A_{21}/P und σ_{eff} oder auch Einflüsse wie das Bleichen des Grundzustandes (im Falle konstanter spektraler Strahlungsdichte) fallen dadurch weg (vgl. auch Kap. IV.2.2.2). In Fällen mit stark schwankenden Druckverhältnissen müsste zusätzlich die Druckabhängigkeit der spektralen Linienbreite beachtet werden. Der obige Zusammenhang wird dann komplexer.

In Bezug auf die Temperatur können wir uns jedoch im vorliegenden Fall darauf beschränken, dass diese einzig über den Boltzmann-Term Einfluss auf das OH-LIF Signal hat. Der Anteil an Vibrationsenergieübertrag (VET) in benachbarte Zustände, für die diese Näherung nicht gilt, wird vernachlässigt. Eine Abschätzung ergibt, dass Besetzungsänderungen in benachbarten Zuständen nur zu einer geringfügigen Änderung des Messsignals führen (Kap. IV.2.3).

Zur endgültigen Lösung des Quantifizierungsproblems galt es nun nach entsprechenden Korrelationen zwischen LIF_{OH} und [OH] zu suchen, die auf Basis der Simulation für verschiedene Flammenbedingungen in einer Flamme auftreten können. Im Fall einer turbulenten Flamme findet man viele mögliche Kombinationen der hier relevanten Größen [OH] und T , da diese durch ein kompliziertes Zusammenspiel von chemischen Reaktionen, Turbulenz und Molekültransport bestimmt werden. Ist nun die Funktion, über die LIF_{OH} mit den beiden Größen [OH] und T verknüpft ist, z.B. aus spektroskopischen Modellierungen bekannt, so kann man [OH] berechnen. Voraussetzung ist wiederum, dass die nichtlineare Gleichung

$$LIF_{OH} - f([\text{OH}], T) = 0 \quad (IV.5)$$

gelöst werden kann. Obwohl im Vorfeld bereits die beeinflussenden Faktoren stark eingegrenzt wurden, ist diese Gleichung mit zwei Unbekannten weiter unterbestimmt. Man kann jedoch an diesem Punkt zusätzliche Information einfließen lassen, indem man noch die Beziehung $R([\text{OH}], T)$ beifügt, welche eine Korrelation der beiden Größen [OH] und T selbst darstellt und aus der numerischen Simulation erhalten wird. Man erhält ein Gleichungssystem mit zwei Gleichungen und zwei Unbekannten, wodurch eine eindeutige Lösung möglich wird.

$$LIF_{OH} - f([OH], T) = 0 \quad (IV.6)$$

$$R([OH], T) = 0 \quad (IV.7)$$

Während die Funktion $f([OH], T)$ von experimentspezifischen Bedingungen, wie der Wahl des Anregungs-/Detektionsschema oder dem experimentellen Aufbau abhängig ist, wird die Beziehung $R([OH], T)$ nicht durch experimentelle Eigenschaften beeinflusst. Sie spiegelt lediglich die thermochemischen Eigenschaften des untersuchten Brennersystems wider. Gelingt es nun, für das entsprechende Experiment geeignete Funktionen $f([OH], T)$ und $R([OH], T)$ aufzustellen und dieses Gleichungssystem zu lösen, so ist eine eindeutige Bestimmung von [OH] aus einem gemessenen Wert LIF_{OH} möglich.

Für das untersuchte System ist es gelungen, diese Voraussetzung zu erfüllen. Unter Berücksichtigung des Temperatureinflusses auf die Besetzung des Grundzustandes (Boltzmann-Faktor $f_B(T)$) und mit Hilfe bekannter Kalibrierwerte für [OH] (McKenna Brenner [95]) konnte eine eindeutige Beziehung zwischen LIF_{OH} und [OH] gefunden werden. In Abb. IV.5 sind die Ergebnisse aus einer Vielzahl von Flamelet-Berechnungen dargestellt, die für unterschiedliche Bedingungen durchgeführt wurden.

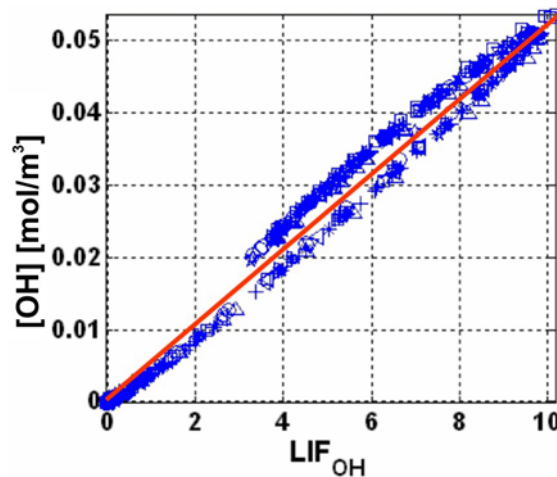


Abb. IV.5: Korrelation zwischen LIF_{OH} und [OH]. Die Daten wurden in einer Vielzahl von 1D-Flamelet-Berechnungen mit einem weiten Spektrum an Anfangsbedingungen für die Modellierung erhalten [93].

Neben Streckungen zwischen 10 s^{-1} und 5000 s^{-1} und Starttemperaturen zwischen 280 K und 350 K wurde auch das Brennstoff/Luft-Verhältnis zwischen $\Phi = 0,85$ und $\Phi = 1,1$ variiert. Es kamen unterschiedliche Mischungsmodelle zum Einsatz.

Die durchgezogene Linie im Diagramm steht für die Beziehung

$$[\text{OH}] = 0,00541 \text{ mol/m}^3 \times \text{LIF}_{\text{OH}} \quad (\text{IV.8})$$

Obwohl die Beziehung für $\text{LIF}_{\text{OH}} > 3,5$ nicht ganz eindeutig ist, so ist sie doch relativ scharf und in Bezug auf Flammenparameter sehr variabel. Die Ungenauigkeit von [OH] aufgrund dieser Nicht-Eindeutigkeit liegt für den gesamten Bereich möglicher LIF Signale unter 15%. Darüber hinaus ist der dargestellte Zusammenhang linear, was die Anwendung besonders einfach gestaltet, obwohl dies für die Methode keine zwingende Voraussetzung ist.

Die Umrechnung von gemessenen OH-LIF Intensitäten in OH-Konzentrationen gestaltet sich somit sehr einfach. Das gemessene Signal wird durch Division durch ein ebenfalls unter gleichen Bedingungen gemessenes Standardsignal normiert. Durch Multiplikation mit dem gefundenen Umwandlungsfaktor (oder bei komplizierteren Zusammenhängen einer experiment-spezifischen Funktion) wird der Wert der OH-Konzentrationen bestimmt.

3.3 Bestimmung der 3D-Gradienten von OH

Nach Abschluss der relativ aufwändigen Vorbereitung der Rohdaten liegen nun zweidimensionale OH-Konzentrationsverteilungen vor, die in Form von zusammengehörigen Bildpaaren aus zwei sich senkrecht kreuzenden Bildern eine dreidimensionale Auswertung der Konzentrationsgradienten in der Schnittlinie erlauben. Für die Bestimmung von Gradienten wurden zwei Verfahren erprobt. Zum einen, die Bestimmung von Gradienten aus einem interpolierten 3D-Volumen, zum anderen, die direkte Berechnung aus den Werten, die unmittelbar in den 2D-Schnitten enthalten sind. Das Verfahren der Interpolation ist in Hoffmann et al. [84] beschrieben. Dabei wird vor Bestimmung der Gradienten ein komplettes 3D-Volumen um die Schnittlinie der beiden Teilbilder durch Interpolation rekonstruiert. Dieses Interpolationsverfahren und die sich daraus ergebenden weiteren Darstellungsmöglichkeiten für einen 3D-Datensatz wurden bereits in Kapitel III.2.1.3 erläutert. Für die Auswertung des vollständigen Datensatzes wurde jedoch auf das weniger daten- und rechenintensive direkte Auswerteverfahren zurückgegriffen. Entlang der Schnittlinie der beiden Teilbilder ist ein vollständiger 3D-„Raum“ erhalten. Zu jedem Bildpunkt sind nämlich auch jeweils direkt benachbarte Bildpunkte in alle drei Raumrichtungen vorhanden, was somit die Berechnung von

dreidimensionalen Gradienten erlaubt. Bei beiden Verfahren wird ein optimierter Sobeloperator (Kantendetektor) als Ableitungsfilter eingesetzt, wie er weiter unten beschrieben ist.

Im Gegensatz zu Glättungsfiltern, die hohe Frequenzen unterdrücken, werden zur Detektion von Kanten Operatoren benötigt, die Grauwertveränderungen hervorheben und vor allem hohe Frequenzen verstärken. Allgemeine Eigenschaften, die ein Ableitungsoperator aufweisen sollte, sind detailliert in der Literatur zu finden [96]. An diesem Punkt sei nur auf die wichtigsten Eigenschaften von Kantenfiltern verwiesen:

- Erhaltung der Objektposition (Verschiebungsfreiheit).
- Unterdrückung des Mittelwertes: Keine Antwort des Ableitungsfilters auf konstante Werte oder einen Offset im Signal. Ebenso keine Antwort eines Ableitungsfilters zweiter Ordnung auf konstante Steigungen.
- Nichtselektive Ableitung: Die Transferfunktion (frequenzabhängige Übertragungsfunktion) eines Ableitungsoperators steigt exponentiell mit ihrer Ordnung, d.h. feine Strukturen (hohe Wellenzahlen im Frequenzraum) werden stärker hervorgehoben als grobe. Um jedoch Robustheit des Operators gegenüber Rauschen zu erreichen, werden die Ableitungsfilter speziell regularisiert, d.h. die Transferfunktion so angepasst, dass eine Dämpfung hoher Wellenzahlen erreicht wird [97].
- Symmetrie: Aus der Forderung der Verschiebungsfreiheit ergibt sich für einen Ableitungsoperator erster Ordnung eine Maske mit ungerader Symmetrie. Durch die Symmetrie vereinfacht sich sowohl die Berechnung der Faltung durch die Reduktion der notwendigen Multiplikationen, als auch die Berechnung der Transferfunktionen.
- Isotropie: Die Operatorantwort eines guten Kantendetektors darf nicht von der Richtung der Kante abhängig sein, man spricht dann von einem isotropen Kantendetektor.

Für den Einsatz in der Bildverarbeitung muss jeder Operator mit den genannten Eigenschaften in diskreter Form vorliegen. Der einfachste Ansatz zur Berechnung eines Gradientenvektors stellen Differenzen erster Ordnung dar. Die erste partielle Ableitung in x -Richtung lässt sich folglich approximieren durch:

$$\frac{\partial f(x_1, x_2)}{\partial x_1} \approx \frac{f(x_1 + \Delta x_1, x_2) - f(x_1 - \Delta x_1, x_2)}{2\Delta x_1} \quad (IV.9)$$

Dieser Diskretisierung entspricht die symmetrische Filtermaske:

$$\mathcal{D}_x = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (IV.10)$$

Diese einfache Form eines Ableitungsfilters bewirkt eine Ableitung in x -Richtung. Es werden also Kanten detektiert, die senkrecht zu dieser Richtung verlaufen. Durch eine Anwendung auch auf die verbleibenden beiden Koordinatenrichtungen erreicht man eine isotrope Ableitungsoperation. Aufgrund der Linearität der Ableitung lassen sich diese Operationen getrennt ausführen und schließlich zusammenfassen. Der Betrag des Gradienten im Zweidimensionalen lässt sich durch Anwendung des folgenden Operators erhalten:

$$|\mathcal{D}| = \sqrt{\mathcal{D}_x \cdot \mathcal{D}_x + \mathcal{D}_y \cdot \mathcal{D}_y} \quad (IV.11)$$

Das Punktsymbol steht dabei für die punktweise Multiplikation des Bildes aus der Filteroperationen \mathcal{D}_x bzw. \mathcal{D}_y mit sich selbst.

Da dieser einfache Operator jedoch in Bezug auf Betrag und Richtung des Gradienten noch fehlerbehaftet ist, werden in der digitalen Bildverarbeitung optimierte Operatoren eingesetzt. Ein Beispiel solcher Operatoren ist der Sobel-Kantendetektor. Er verwendet Differenzenfilter, die das Bild in der Richtung senkrecht zur Ableitungsrichtung mitteln. Durch Optimierung dieses Operators selbst lassen sich sowohl Betrags-, als auch Richtungsfehler des Gradienten minimieren. Tatsächlich lässt sich zeigen, dass folgender Operator optimal ist [97]:

$$\mathcal{F}_x = \frac{1}{32} \begin{bmatrix} 3 & 0 & -3 \\ 10 & 0 & -10 \\ 3 & 0 & -3 \end{bmatrix}, \text{ bzw. } \mathcal{F}_y = \frac{1}{32} \begin{bmatrix} 3 & 10 & 3 \\ 0 & 0 & 0 \\ -3 & -10 & -3 \end{bmatrix} \quad (IV.12)$$

Bei diesem Filter handelt es sich um einen separablen Filter, d.h. er lässt sich in die beiden Teiloperationen Ableitung \mathcal{D}_i und die dazu senkrechte Interpolation $\mathcal{I}_{j,k}$ separieren. Diese können nacheinander auf das Bild angewendet werden.

Im Dreidimensionalen muss dies für alle drei Raumrichtungen getrennt erfolgen. Der symmetrische Kern für die Ableitung in der Richtung i ist bereits von oben (IV.10) bekannt:

$$\mathcal{D}_i = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (IV.13)$$

Senkrecht dazu wird in den beiden anderen Richtungen j und k mit einem optimierten Kern $\mathcal{I}_{j,k}$ interpoliert:

$$\mathcal{I}_{j,k} = \frac{1}{16} \begin{bmatrix} 3 & 10 & 3 \end{bmatrix} \quad (IV.14)$$

Diese optimierten Operatoren wurden eingesetzt, um die im folgenden Kapitel IV.0 zusammengefassten 2D- und 3D-Gradienten aus den vorbereiteten Bildern der OH-Konzentrationen zu berechnen.

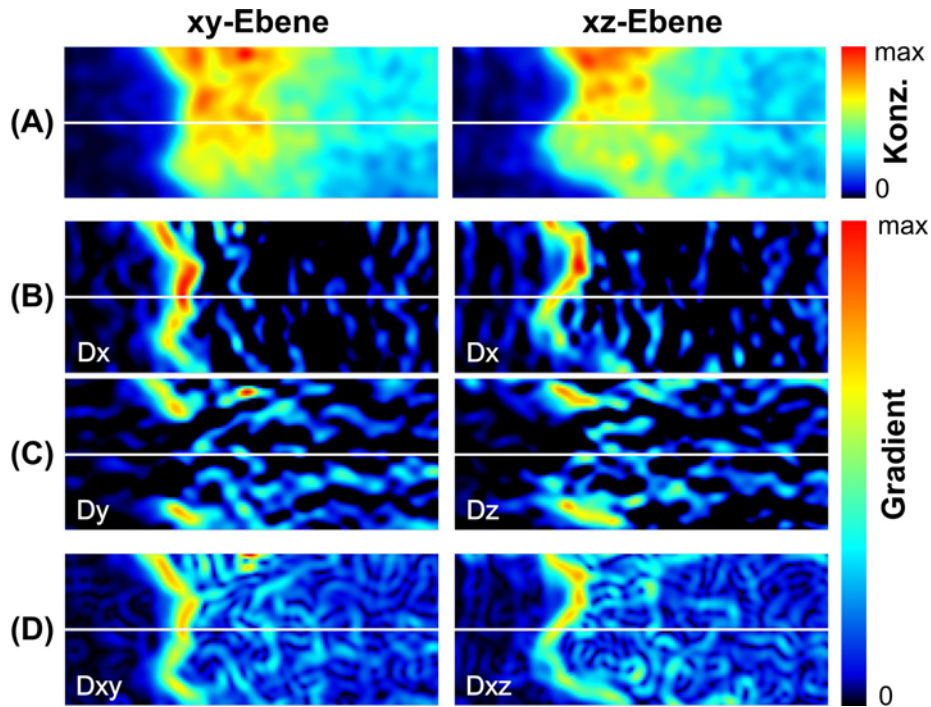


Abb. IV.6: Berechnung der Gradienten: zweidimensionale Konzentrationsverteilungen in den beiden Messebenen (A), die Schnittlinie ist durch eine waagerechte Gerade markiert; Ableitungen in den 3 Raumrichtungen (B) und (C), negative Gradienten sind nicht dargestellt; Beträge der 2D-Gradienten in den Messebenen (D). (Abgebildeter Bereich: $18,4 \times 7,4 \text{ mm}^2$)

Das Verfahren ist anhand eines einzelnen Datensatzes in Abb. IV.6 veranschaulicht. Aus den beiden senkrecht stehenden Messebenen (xy - und xz -Ebene) wurden separat die Gradienten in x -, y - und z -Richtung berechnet (Abb. IV.6(B) und (C)). Aus diesen Gradienten können dann analog der Gleichung IV.11 sowohl die Beträge der 2D-Gradienten (Abb. IV.6(D)) in den beiden

Messebenen entlang der Schnittlinie, als auch die Beträge des 3D-Gradienten entlang der Schnittlinie berechnet werden.

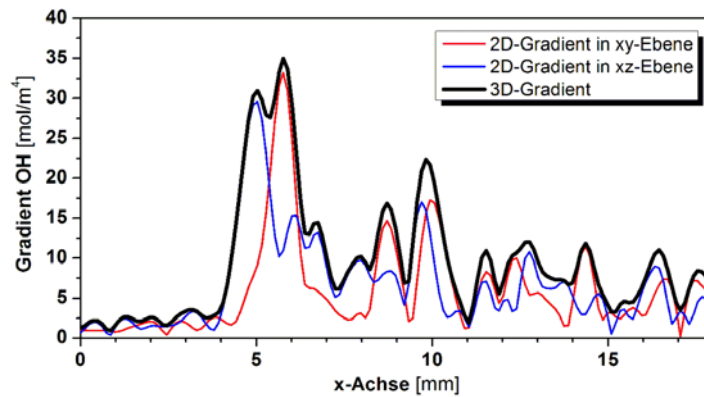


Abb. IV.7: Auftragung der 2D- und 3D-Gradienten entlang der Schnittlinie aus Abb. IV.6. Teilweise sind deutliche Abweichungen zu beobachten. Bei einer reinen zweidimensionalen Betrachtung erhält man daher nur eine Projektion des realen Gradienten auf die Messebene.

Zwischen den Beträgen der 2D- und 3D-Gradienten fallen deutliche Abweichungen auf, diese weisen auf einen systematischen Fehler hin, welcher sich bei einer reinen 2D-Bestimmung ergibt. Diese Abweichungen werden noch in Kapitel IV.4.3 näher diskutiert.

Schließlich wurden die Werte in den drei Raumrichtungen am Ort des steilsten Anstiegs des 3D-Gradienten verwendet, um die Orientierung der Flammenfront im Raum zu bestimmen. Die positiven oder negativen Beträge können als Komponenten des Normalenvektors der Flammenfront aufgefasst werden (vgl. auch Kap. IV.4.3).

4 Ergebnisse

Die folgenden Kapitel geben die Ergebnisse der Untersuchungen wieder. In Kapitel IV.4.1 sind die Ergebnisse, die in Zusammenhang mit den simultanen 1D-Raman-Messungen erhalten wurden, zusammengefasst. Es werden exemplarisch komplementäre Ergebnisse gegenübergestellt. Aus den 1D-Raman-Messungen werden eindimensionale Profile der Molenbrüche der Majoritätenspezies und daraus erhaltene Temperaturprofile mit den Konzentrationsprofilen von OH aus simultanen LIF-Messungen orts aufgelöst in der Flammenfront verglichen. Die späteren Abschnitte beschränken sich auf die Analyse der Ergebnisse aus den 3D-LIF Messungen ohne Berücksichtigung der Raman-Daten, jedoch unter Zuhilfenahme des in Kapitel IV.3.2

beschriebenen simulationsgestützten Verfahrens zur Quantifizierung. Dies hat seine Ursache in dem in Kapitel IV.2.6 dargelegten Problem der Überlagerung der Messvolumina der beiden Verfahren aufgrund von Vibrationsstörungen im Aufbau.

Die im folgenden Abschnitt beschriebenen Raman-Messungen wurden von Mitarbeitern des Instituts für technische Verbrennung der Universität Stuttgart durchgeführt und bearbeitet. Die nachfolgenden Ausführungen sind daher so gehalten, dass ein grobes Verständnis der Auswertemethode möglich ist. Für weiterführende Informationen zu Raman-Messverfahren sei auf allgemeine Literatur verwiesen [6, 8].

4.1 Simultane 3D-LIF / 1D-Raman-Messungen

Die OH-LIF-Intensitäten wurden in der zuvor beschriebenen Weise in 2 Ebenen erhalten. Nach Bestimmung der Schnittlinie in beiden Bildern wurde ein Bereich von etwa ($12 \times 5 \text{ mm}^2$) nahe der Flammenfront selektiert (Abb. IV.8). Vor allem sind auch die Gradienten, die in diesem Bereich zu finden sind, von besonderem Interesse. Diese können für Korrelationen mit Daten aus Raman-Messungen (verschiedenen gemessenen Skalaren, Spezies-Molenbrüchen oder Temperaturen) herangezogen werden.

Die Messungen von Raman und LIF fanden quasi-simultan innerhalb eines Zeitfensters von etwa 350 ns statt. Die nur wenige Millimeter lange Raman-Messstrecke war mit der Schnittlinie der beiden LIF-Messebenen überlagert. Um das Raman-Signal sowohl örtlich entlang der Schnittlinie als auch spektral aufzulösen, wurde, wie oben beschrieben, ein Imaging-Spektrometer mit CCD-Kamera eingesetzt. Das Signal der Majoritätenspezies ($k = \text{CO}_2, \text{O}_2, \text{CO}, \text{N}_2, \text{CH}_4$ und H_2O) wurde somit in eine zweidimensionalen Datenmatrix überführt. Die Intensität des Signals ($S_{i,j}$), korreliert mit der Konzentration der Spezies, ist in einer 2D-Matrix abgelegt, bei der in einer Achse die spektrale Verschiebung der Raman-Signale der verschiedenen Spezies (*Index j*) und senkrecht dazu der Ort des Signals (*Index i*) kodiert sind.

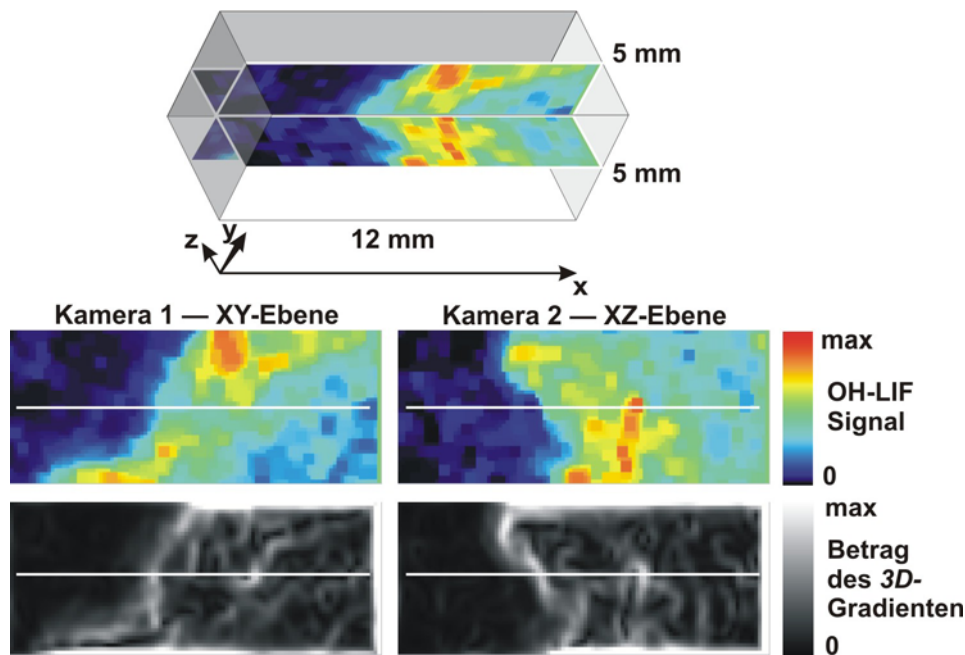


Abb. IV.8: Oben: 3D-Volumen mit gemessenen OH-LIF-Intensitäten in den beiden Messebenen. Unten: Die im Volumen abgebildeten Ebenen jeweils als Darstellung der relativen LIF-Intensitäten und als Darstellung der Beträge der 3D-Gradienten (nach Interpolation im Volumen). Die abgebildeten Ausschnitte entsprechen einem Bildbereich von 100×40 Pixel ($12 \times 5 \text{ mm}^2$). Der Bereich der Schnittlinie ist durch weiße Linien gekennzeichnet.

Die Datenmatrix ist mit den lokalen Temperaturprofilen über eine Gleichung der Form

$$S_{i,j} = \sum_k \frac{p}{RT_i} x_{i,k} f_{i,j,k}(T_i) \quad (IV.15)$$

verknüpft [98]. Darin ist gegeben der Absolutdruck p (= konst.), die ideale Gaskonstante R und die Temperatur T_i am Ort i . Der Molenbruch der Komponente k am Ort i wird durch $x_{i,k}$ ausgedrückt. Die Funktion $f_{i,j,k}(T_i)$ beschreibt die Konvertierung der spektralen Emissionseigenschaften der Spezies k (normiert auf einen Molenbruch von 1) in die von der Kamera stammenden Datenmatrix. Sie umfasst daher Parameter aus Moleküleigenschaften, wie die Temperaturabhängigkeit der Raman-Streuquerschnitte und die spektrale Linienform der Emission, wie auch Eigenschaften des experimentellen Aufbaus, wie Intensität des Pumplasers und Detektionseffizienz. Die Funktion $f_{i,j,k}(T_i)$ wurde mit Hilfe des Spektrensimulationsprogrammes für Raman-Spektren RAMSES [99] unter der Annahme gefunden, dass sich die Molenbrüche der bestimmten Spezies an einem Ort i zu 1 addieren. Mit der oben stehenden Gleichung ergibt sich daraus ein nichtlineares Gleichungssystem, welches für T_i und $x_{i,k}$ gelöst werden kann und orts aufgelöste Profile von Temperatur und Molenbrüchen liefert. Zur

numerischen Lösung des Gleichungssystems wurde das Lösungsprogramm NLSCON (Gauss-Newton-Type Solver) eingesetzt [100].

Die erhaltenen Temperaturprofile dienen schließlich in diesem Ansatz der Auswertung zur Quantifizierung der OH-Konzentrationen aus den gemessenen OH-LIF-Intensitäten (s. oben). Dazu wurden Eichmessungen der OH-LIF-Intensität in einer bekannten, gut charakterisierten vorgemischten flachen Flamme (McKenna-Standard-Brenner) durchgeführt [94, 95]. Mit Hilfe der Temperaturdaten aus den Raman-Messungen wurde dann der temperaturabhängige Boltzmann-Term für die Grundzustandsbesetzung berechnet. Mit diesen Daten lassen sich schließlich OH-Konzentrationen aus dem OH-LIF-Signal entlang der Schnittlinie berechnen. In Abb. IV.9 sind die mit Hilfe der Temperaturinformationen quantifizierten, ortsaufgelösten OH-Konzentrationen den Daten, die aus Raman erhalten wurden, direkt gegenübergestellt.

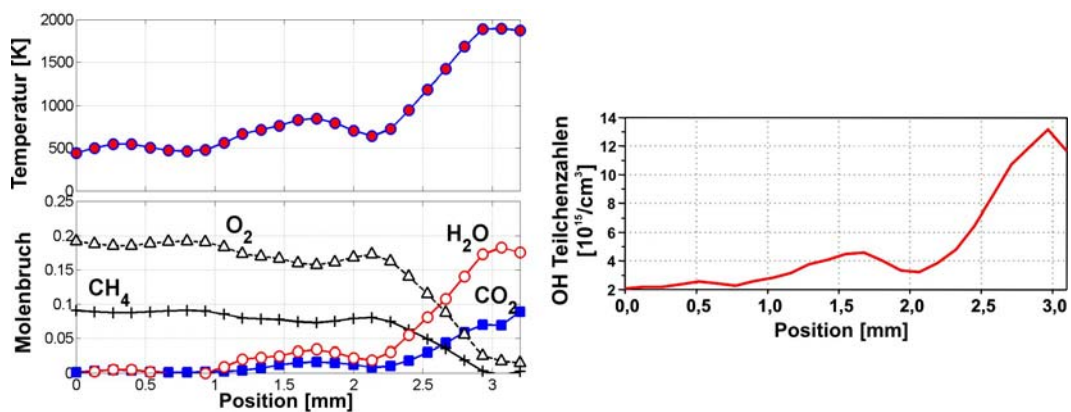


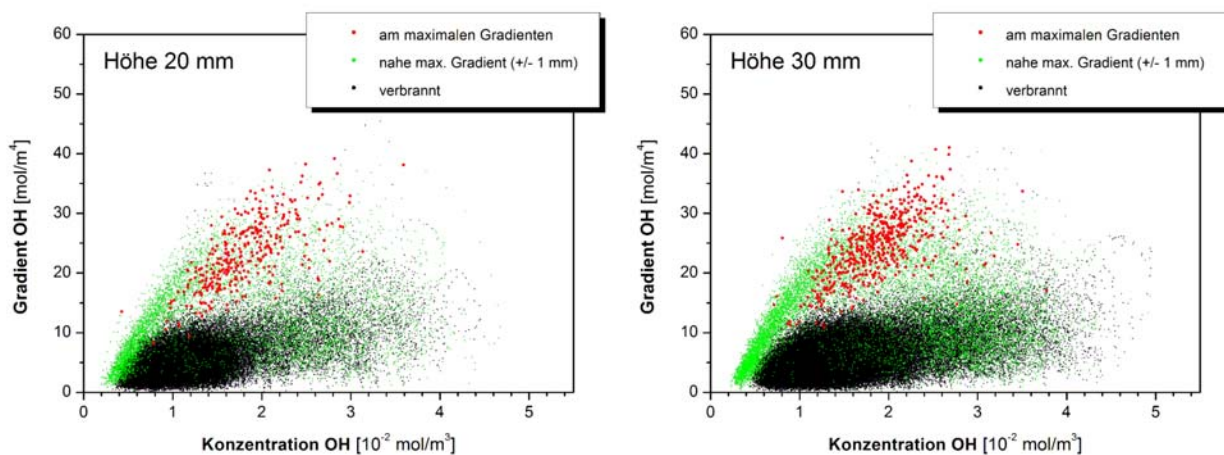
Abb. IV.9: Gegenüberstellung von Raman- und LIF-Ergebnissen im Bereich der Flammenfront. Links: Spezies-Molenbrüche und daraus bestimmtes Temperaturprofil. Die erhaltenen Temperaturprofile dienen u.a. zur Quantifizierung des LIF-Signales. Rechts: Simultan bestimmtes Profil der OH-Teilchendichten.

Die Ergebnisse in Abb. IV.9 stellen auch ein gutes Beispiel für die Bedeutung von dreidimensionalen Datenfeldern dar. Die dargestellten Raman-Profile zeigen im unverbrannten Bereich zwischen 1 und 2 mm einen Anstieg in der Temperatur und einen Abfall der O₂- und CH₄-Molenbrüche entlang der Profile. Gleichzeitig steigt die Teilchenzahl von OH im selben Bereich an. Dieses Verhalten im Bereich vor der Flammenfront wirkt in Hinblick auf die eindimensionalen Daten ungewöhnlich. Aus den 3D-Daten aus den LIF-Messungen wird jedoch schnell deutlich, woher dieses Verhalten rührt. Bei genauerer Betrachtung der LIF-Signale in Abb. IV.8 fällt auf, dass die in der *xz*-Ebene liegende Flammenfront (vgl. auch in der Gradientendarstellung) die Schnittlinie in diesem Bereich von der Seite her schwach berührt. Dadurch wird das Verhalten, welches man im 1D-Plot beobachtet sehr gut erklärt.

4.2 Korrelationen von OH-Konzentration und 3D-Gradient

Grundlegendes Ziel der Experimente an der turbulenten Vormischflamme war die Untersuchung möglicher Korrelationen der gemessenen Größen. Im Zentrum der Untersuchung stand vor allem die Bestimmung von Korrelationen in Zusammenhang mit OH-Konzentrationen und im Speziellen mit deren 3D-Gradienten. Bei den folgenden Ergebnissen handelt es sich um Korrelationen zwischen dem 3D-Konzentrationsgradienten von OH und der OH-Konzentration selbst. Die Daten zur Erstellung der Korrelationen wurden orts aufgelöst ausgewertet. Das bedeutet, es wurden nicht nur die verschiedenen Messhöhen (20 – 80 mm über Brenneraustritt) getrennt ausgewertet, sondern auch die Datenpunkte nach ihrer Position relativ zum steilsten 3D-Gradienten aufgeschlüsselt. Für jede Grafik wurden dabei jeweils zwischen 37 000 und 140 000 Datenpunkte ausgewertet, davon zwischen 3 100 und 11 300 im Bereich der Flammenfront. Aus insgesamt mehr als 2 400 Bildpaaren wurden so knapp 600 000 Datenpunkte gewonnen. Da die Schnittlinie eines jeden sich kreuzenden Bildpaares einer Messung in erster Näherung senkrecht zur Flammenoberfläche (Flammenfront) steht und etwa 35 mm der Flamme in x -Richtung abdeckt, wird nicht nur der Bereich der Flammenfront selbst, sondern auch ein Bereich von einem Millimeter außerhalb, sowie ein größerer Bereich von mehr als 30 mm innerhalb der Flamme abgebildet. Die Datenpunkte in den nachfolgenden Scatterplots wurden daher zur besseren Übersichtlichkeit farblich in drei Bereiche eingeteilt:

- am Maximum des 3D-Gradienten
- aus einem Bereich zwischen 1 mm vor und hinter dem maximalen Gradienten
- aus dem verbrannten Bereich > 1 mm hinter der Flammenfront zur Brennerachse hin



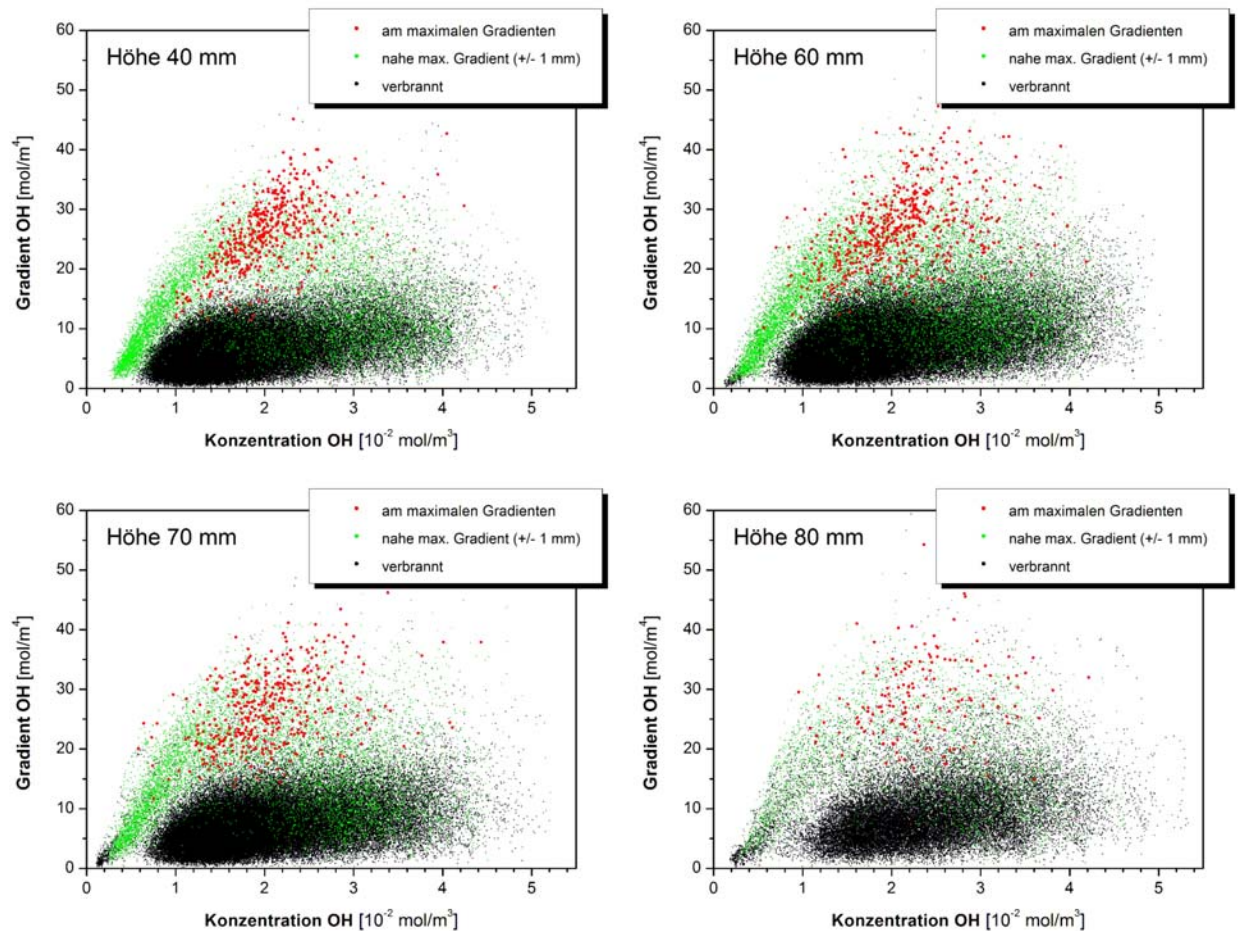


Abb. IV.10: Korrelationen des 3D-Gradienten von OH und der OH-Konzentration. Die Datenpunkte sind farblich nach ihrem Ursprung aufgeschlüsselt.

Die Unterscheidung der Datenpunkte anhand ihrer Herkunft deckt deutlich die unterschiedlichen Regime der auftretenden Gradienten in der Flamme auf. Die Gradienten im Bereich der Flammenfront (grün dargestellt) decken einen relativ weiten Wertebereich ab, sowohl in ihren Beträgen, als auch hinsichtlich der Konzentrationen, bei denen sie zu finden sind. Während die Korrelation für die auftretenden Gradienten bei niedrigen Konzentrationen relativ scharf ist, nimmt die Streuung bei mittleren und höheren Konzentrationen rasch zu. Dies ist relativ einsichtig, wenn man die beiden Seiten der Flammenfront getrennt betrachtet. Im nach außen weisenden Teil der Flammenfront kommen nur sehr niedrige OH-Konzentrationen vor, die mit dem Durchgang durch die Flammenfront rasch ansteigen und so auch rasch ansteigende Gradienten aufweisen (linke Seite der Grafiken), welche bei mittleren Konzentrationen ihr Maximum erreichen. Auf der nach innen gewandten Seite der Flammenfront ist der Abfall der Konzentration deutlich schwächer, da in den hier ablaufenden Reaktionen OH weiterhin beteiligt ist und durch die heiße Rezirkulationszone ein OH-Grundvorkommen erhalten bleibt.

Das bedeutet zum einen, dass schon von Grund auf höhere OH-Konzentrationen zu finden sind, zum anderen aber auch, dass ein relativ breites Spektrum von Gradienten zu finden ist, da teilweise auch konstante Konzentrationen vorkommen (rechte Seite der Grafiken). Eine Teilmenge dieser Datenpunkte stellen die Wertekorrelationen am Maximum des Gradienten dar (rot dargestellt). Diese zeigen, dass die steilsten Gradienten fast ausschließlich bei mittleren Konzentrationen zu finden sind, da sich die Gradienten zu höheren Konzentrationen hin wieder abflachen. Die dritte Teilmenge der Datenpunkte (schwarz dargestellt) entstammt dem inneren Bereich der Flamme, in dem die meisten Reaktionen bereits abgeschlossen sind. Vorhandene OH-Vorkommen decken zwar einen weiten Konzentrationsbereich ab, da sie aber nicht direkt aus Verbrennungsreaktionen am Ort ihres Vorkommens stammen, sondern durch Durchmischung und Transport dorthin gelangten, findet man nur relative flache Gradienten in diesem Bereich.

4.2.1 Vergleich mit der Simulation

Die Ergebnisse aus der Untersuchung der 3D-Gradientenkorrelation zeigen, je nach Herkunftsort der Daten in der Flamme, eine deutliche Unterteilung der Datenpunkte in abgrenzbare Bereiche. Bezüglich der Beträge der Gradienten fällt jedoch auf, dass die erwartete Steilheit der Gradienten bei niedrigen Höhen über dem Brenneraustritt aufgrund der stärkeren Wechselwirkung von Strömung und Reaktion im Vergleich zu Gradienten weiter stromab nicht zu beobachten ist. Um einen Anhaltspunkt für die Größenordnung der zu erwartenden Gradienten zu erhalten wurde von R. Schießl das bereits für die Abschätzung des Quenching (Kap. II.2.6.2) benutzte Flamelet-Modell eingesetzt. Dieses Modell kommt trotz unterschiedlich gestalteter Geometrie in seinen Strömungs- und Reaktionseigenschaften relativ nahe an die Eigenschaften der untersuchten Flamme heran. Im Modell handelt es sich um zwei gegeneinander gerichtete vorgemischte Erdgas/Luft-Ströme in deren Stagnationsgebiet sich die Flamme ausbildet. Über die Strömungsgeschwindigkeit der Gasströme können unterschiedliche Streckungen der Flamme simuliert werden. Zur Simulation eines instationären Zustandes wurde der Fluss einer der Strömungen sinusförmig variiert. Es handelt sich um eine adiabatische Flamme mit einer Lewiszahl $Le = 1$ und einem Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0,95$ mit den Speziesmolenbrüchen des unverbrannten Gemisches $x(\text{O}_2) = 0,1909$, $x(\text{N}_2) = 0,7182$ und $x(\text{CH}_4) = 0,0909$. Die Startbedingungen der Simulation lagen bei einer Temperatur von 300 K und einem Druck von 1 bar.

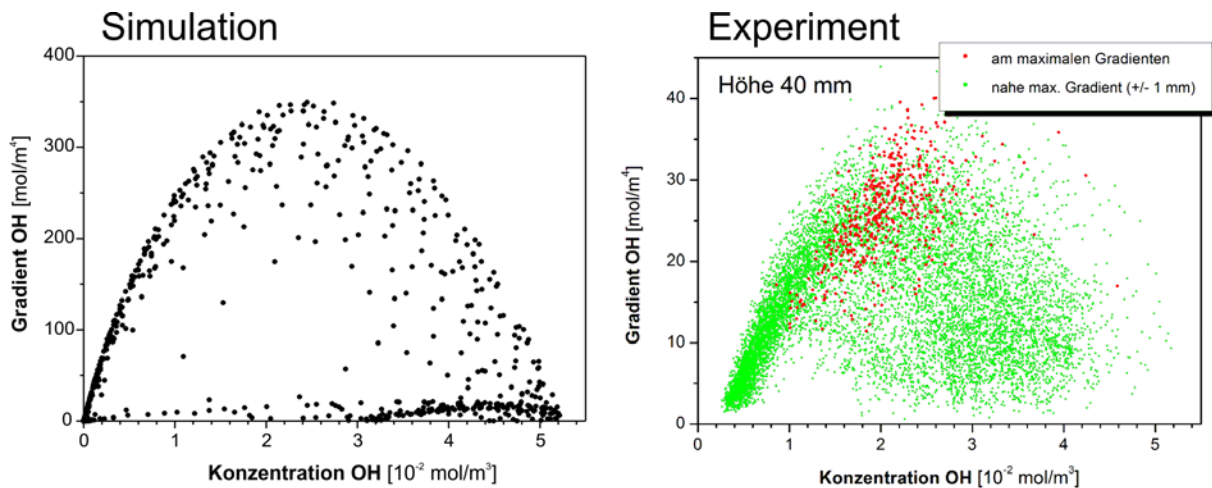


Abb. IV.11: Korrelation des 3D-Gradienten von OH mit der Konzentration. Vergleich von Simulation und Experiment. Links, das Resultat aus dem instationären Flamelet-Modell^e. Auf der rechten Seite, die Korrelation, die aus dem Experiment (hier: Höhe 40 mm) erhalten wurde. Zum besseren Vergleich wurden nur Datenpunkte aus einem Bereich von ± 1 mm um die Flammenfront dargestellt.

Bezüglich der auftretenden Konzentrationen im Modell zeigt sich eine weitgehende Übereinstimmung mit dem Experiment. Auch die grundsätzliche Form der Verteilung der Datenpunkte stimmt qualitativ weitgehend überein, wenn auch die experimentellen Daten eine breitere Streuung aufweisen. Der Teil des Diagramms, der dem verbrannten Bereich im Zentrum der Flamme zugeordnet werden kann, ist aufgrund der Vielzahl der Datenpunkte im Experiment stärker betont. Jedoch zeigt sich in Bezug auf die Größenordnung des maximalen Betrages des Gradienten eine relativ große Abweichung zum Experiment. Diese Abweichung ist auf das Auflösungsvermögen des Aufnahmesystems und die notwendigen Schritte in der Nachbearbeitung der Daten zurückzuführen. Da nur bedingt eine Einflussnahme auf das Auflösungsvermögen möglich ist, bzw. Nachbearbeitungsschritte in der Datenverarbeitung unumgänglich waren, wird in Kapitel IV.5 eine Abschätzung der entsprechenden Einflüsse unternommen.

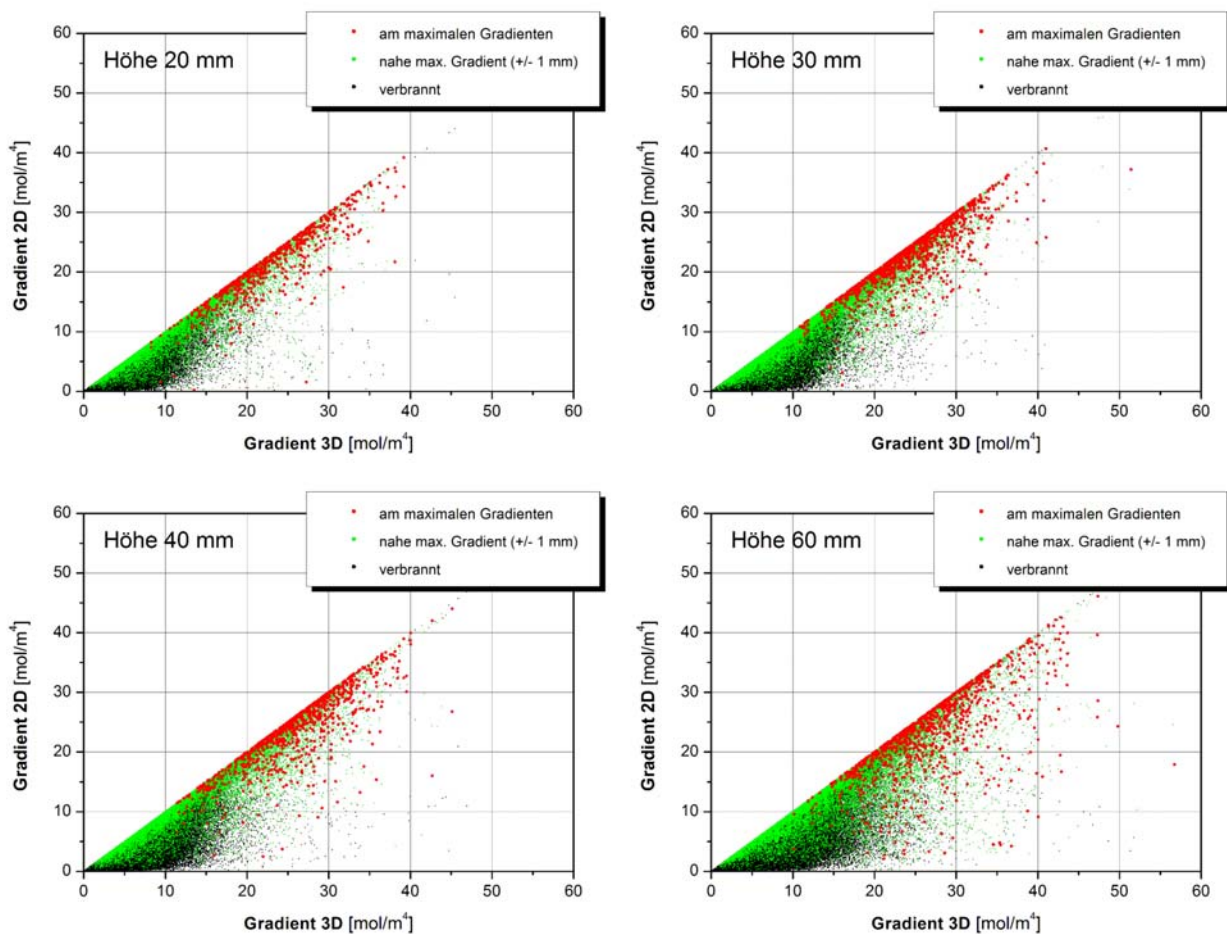
4.3 Korrelationen von 2D- und 3D-Gradienten von OH

Bei der Berechnung und Gegenüberstellung der Gradienten aus der Projektion auf die Messebenen (2D-Gradienten) und des realen Gradienten (3D-Gradient) wie in der bereits gezeigten Abb. IV.7 (Seite 66) fällt auf, dass die Gradientenbeträge teilweise beträchtlich abweichen. Dies ist nicht verwunderlich, da die 2D-Beträge nur eine Projektion des realen

^e Quelle: R. Schießl, ITV, Universität Stuttgart

Gradienten auf die entsprechende Messebene darstellen. Daher kann im Prinzip nur eine Messung des realen Gradienten mit allen drei Richtungskomponenten die eigentlichen Verhältnisse korrekt wiedergeben.

In den nachfolgenden Grafiken (Abb. IV.12) wurden daher die 2D-Gradienten den 3D-Gradienten in größerem Umfang detailliert gegenübergestellt. Aufgetragen wurden jeweils die 2D-Gradienten aus beiden Messebenen gegen die jeweiligen 3D-Gradienten. Auch hier wurden die Datenpunkte analog zu oben nach ihrem Ursprung relativ zum maximalen 3D-Gradienten farblich aufgeschlüsselt. Es ist zu erkennen, dass die 2D-Gradienten teilweise deutlich von den 3D-Gradienten abweichen. Diese Abweichungen sind über nahezu den gesamten Bereich vor und hinter der Flammenfront weitgehend konstant. Auch über den weiten Bereich der auftretenden Gradientenbeträge sind die Unterschiede gering. Geringere Abweichungen bei flachen bzw. sehr steilen 3D-Gradienten sind wohl vor allem auf die geringere Anzahl von Datenpunkten zurückzuführen.



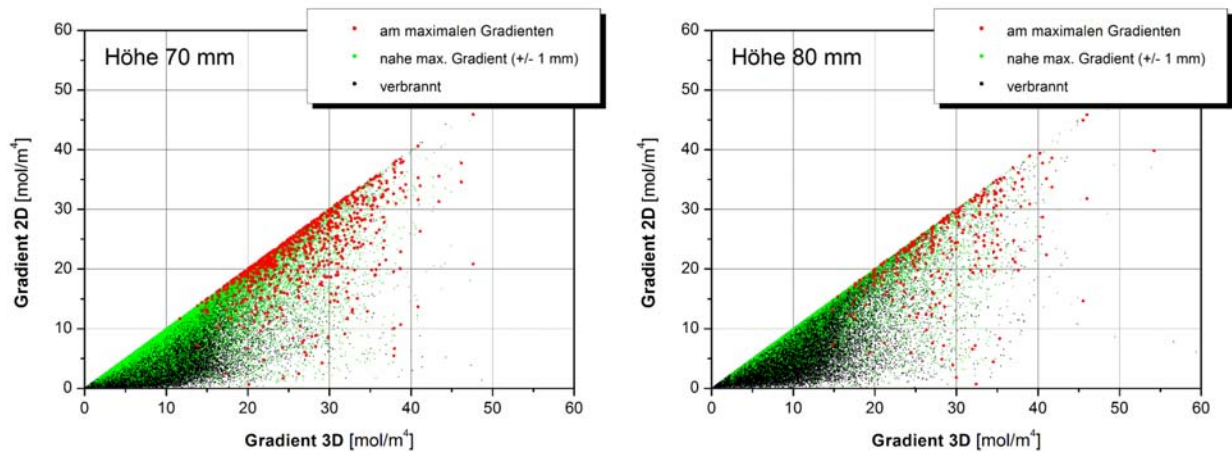


Abb. IV.12: Korrelationen zwischen berechneten 2D- und 3D-Gradienten aus den Messungen. Unabhängig vom Ursprung der Datenpunkte sind teilweise deutliche Unterschiede in den Beträgen zu beobachten. Eine isolierte Betrachtung von Ergebnissen aus 2D-Messungen kann daher zu einer Fehlinterpretation der erhaltenen Beträge führen. Diese Fehlinterpretation verstärkt sich noch mit zunehmender Messhöhe, da die Abweichungen der Beträge der Gradienten mit steigender Höhe über dem Brenneraustritt zunehmen.

Auffällig ist jedoch, dass sich die Abweichungen der Beträge mit zunehmender Messhöhe verstärken. Während die Korrelation der Gradienten nahe dem Brenneraustritt zumindest für Werte nahe der Flammenfront relativ schmal ist, nimmt ihre Streuung mit steigender Messhöhe erkennbar zu. In Abb. IV.13 sind die mittleren Abweichungen der 2D-Gradienten zum 3D-Gradienten aufgetragen. Das Diagramm zeigt bezogen auf die Höhe über Brenneraustritt einen Anstieg der mittleren absoluten Abweichung in den jeweiligen Messebenen (rote und blaue Kurve). Beachtet man jedoch, dass bei dieser Betrachtung die Gradientenabweichungen aus beiden Ebenen gleich gewichtet einfließen, der Betrag des 3D-Gradienten aber hauptsächlich von dem größeren der beiden 2D-Gradienten (mit der kleineren Abweichung) bestimmt wird, lässt sich auch ein Mittelwert der maximalen Abweichung bestimmen. Dabei geht man im Prinzip davon aus, dass bei einer Messung des Gradienten im Zweidimensionalen jeweils nur die Projektion des realen Gradienten mit der größten Abweichung erfasst wurde. Wird dies berücksichtigt, so erhält man einen Fehler, der im Verhältnis zur gleich gewichteten Berechnung fast doppelt so hoch liegt (schwarze Kurve). Die mittlere relative Abweichung bezüglich des 3D-Gradienten betrug in dem Fall bei den vorgestellten Ergebnissen zwischen 14 und 29% (grüne Kurve). Bei einer rein statistischen bzw. isotropen Betrachtung ohne Unterscheidung bezüglich der Orientierung zur Messebene (z.B. bei der Bestimmung eines Mittelwertes) beträgt die relative Abweichung im beschriebenen Fall zwischen 8 und 17% (orange Kurve).

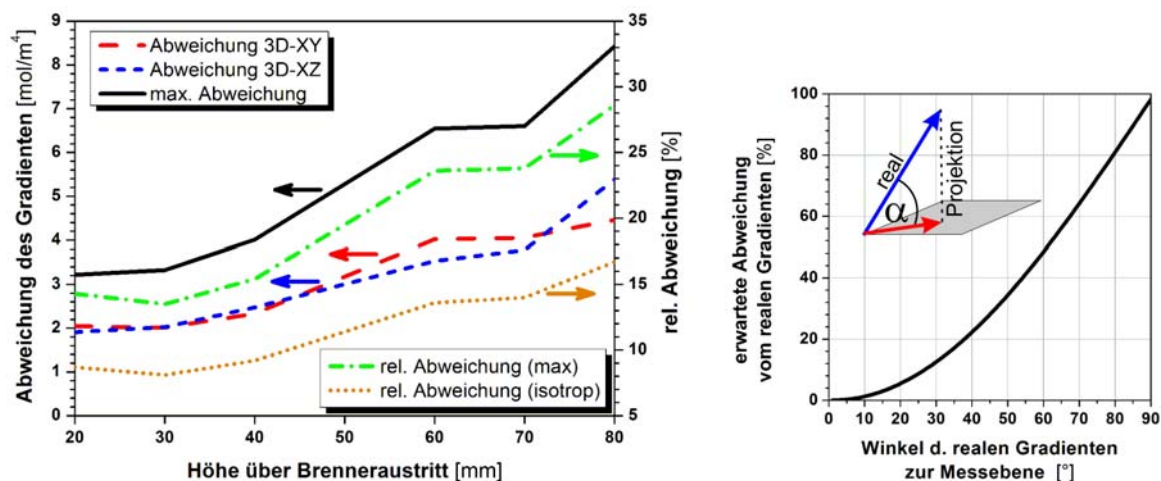


Abb. IV.13: Links: Mittlere Abweichung zwischen 2D- und 3D-Gradient. Während bei der roten und blauen Kurve jeweils die 2D-Gradienten in der jeweiligen Messebene mit dem 3D-Gradienten verglichen wurden, floss in die Berechnung der schwarzen Kurve nur die jeweils größere Abweichung zwischen den Gradienten ein. Das mittlere relative Verhältnis dieser maximalen Abweichung zum 3D-Gradienten ist als grüne Kurve dargestellt. Rechts: Erwartete Abweichung des bestimmten Gradienten vom realen aufgrund der Projektion in Abhängigkeit des eingeschlossenen Winkels zwischen Gradient (Normalenvektor der Flammenfrontebene) und Messebene.

Das rechte der beiden Diagramme in Abb. IV.13 zeigt die rechnerisch ermittelte Abweichung des bestimmten vom realen Gradienten aufgrund der Projektion auf die Messebene in Abhängigkeit vom eingeschlossenen Winkel.

Die Zunahme der Diskrepanz zwischen Projektion und 3D-Gradient lassen sich in erster Linie durch den Verlust einer Vorzugsrichtung während der Messung erklären. Die Schnittlinie der beiden Messebenen steht in erster Näherung senkrecht zur Ebene der Flammenfront, damit also im optimalen Winkel, um den Gradienten in der Flammenfront zu bestimmen. Jede Abweichung des Schnittwinkels von Messlinie und Flammenfront führt zu einem Abflachen des in einer Messebene bestimmten Betrages des Gradienten. Dass die Näherung eines senkrechten Schnittwinkels bereits für niedrige Höhen über dem Brenneraustritt nicht gilt, zeigt die bereits dort zu beobachtende Abweichung zwischen 2D- und 3D-Gradient von ca. 14%. Die Flammenoberfläche ist wie bei jeder turbulenten Flamme keine glatte Zylinderoberfläche, sondern aufgefaltete und durch das Zusammenspiel von Gasdynamik und Chemie strukturiert. Mit zunehmender Höhe über dem Brenneraustritt kommt zudem noch ein Aufreißen der Flamme und die Beimischung umgebender Luft hinzu, wodurch sich die Struktur der Flamme und im kleineren Maßstab der Flammenfront ändert. Der Schnittwinkel von Messlinie und Flammenfrontebene weicht dadurch immer mehr vom Optimum ab.

Um zu veranschaulichen, wie sich die statistische Ausrichtung der Flammenfront mit zunehmender Höhe über dem Brenner verhält, wurden Vektorgraphen der Ausrichtung der

Flammenfront im Raum erstellt. Dazu wurden die Beträge des OH-Gradienten mit dem steilsten Anstieg (also in der Flammenfront) als Beträge der Komponenten eines Richtungsvektors benutzt, welcher dem Normalenvektor der Flammenfrontebene an diesem Punkt entspricht.

Die Abb. IV.14 zeigt die Auftragung dieser Vektoren für die verschiedenen Messhöhen.

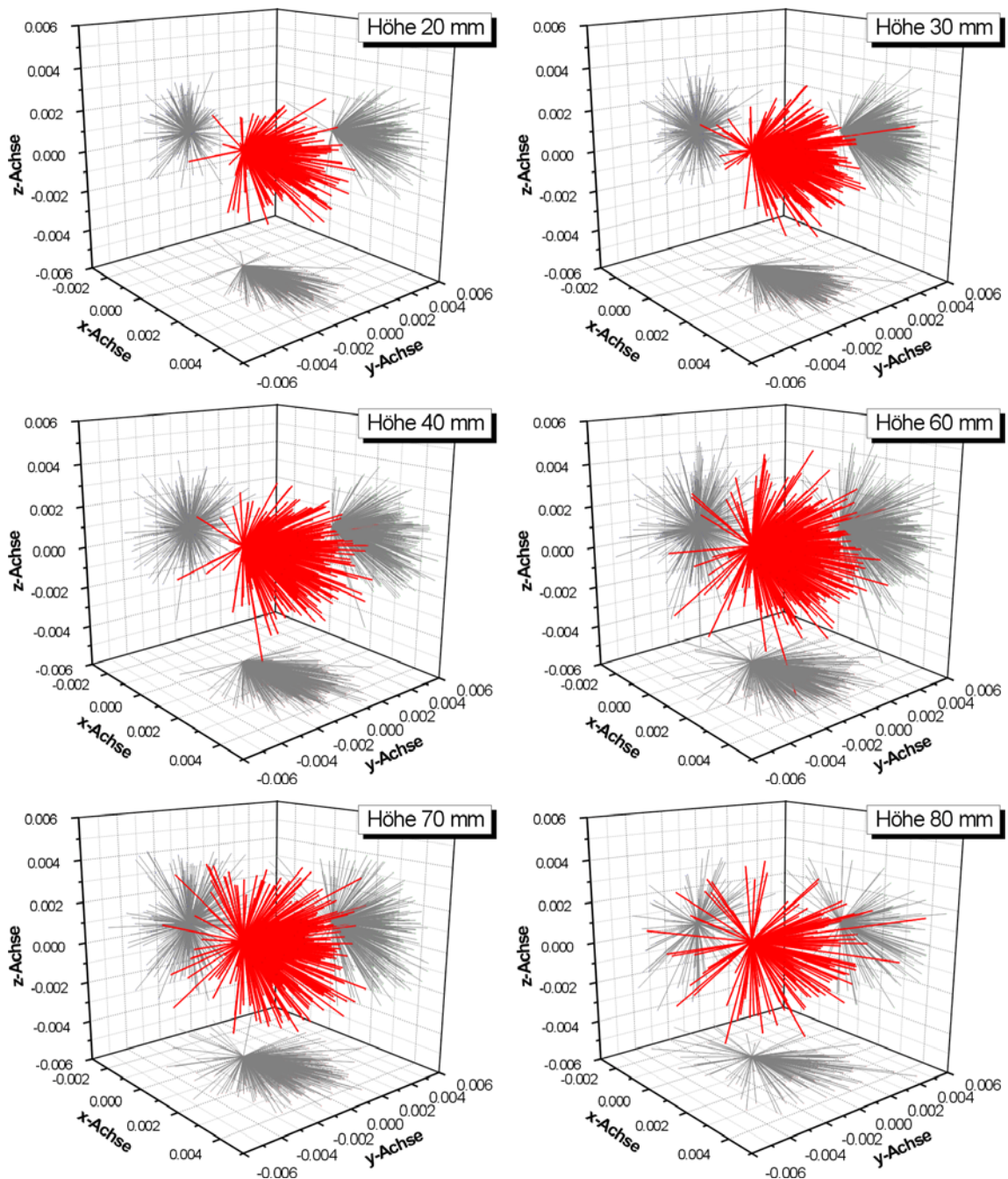


Abb. IV.14: Vektorgraphen der Ausrichtung der Flammenfrontebene relativ zur Messlinie. Dargestellt sind die Normalenvektoren der Flammenfrontebene, die sich aus den Beträgen der Gradienten in den drei Koordinatenrichtungen ergeben, sowie deren Projektionen auf drei Koordinatenebenen. Die Zunahme der Streuung der beobachteten Orientierungen der Flammenfrontebene mit steigender Höhe über dem Brenneraustritt ist deutlich sichtbar.

Die Abweichung der Ebenenausrichtung der Flammenfront aus der Senkrechten relativ zur Messlinie lässt sich auch statistisch auswerten. Zu diesem Zweck wurden Histogramme erstellt, in denen die relativen Häufigkeiten der Winkelabweichungen aufgetragen wurden (Abb. IV.15).

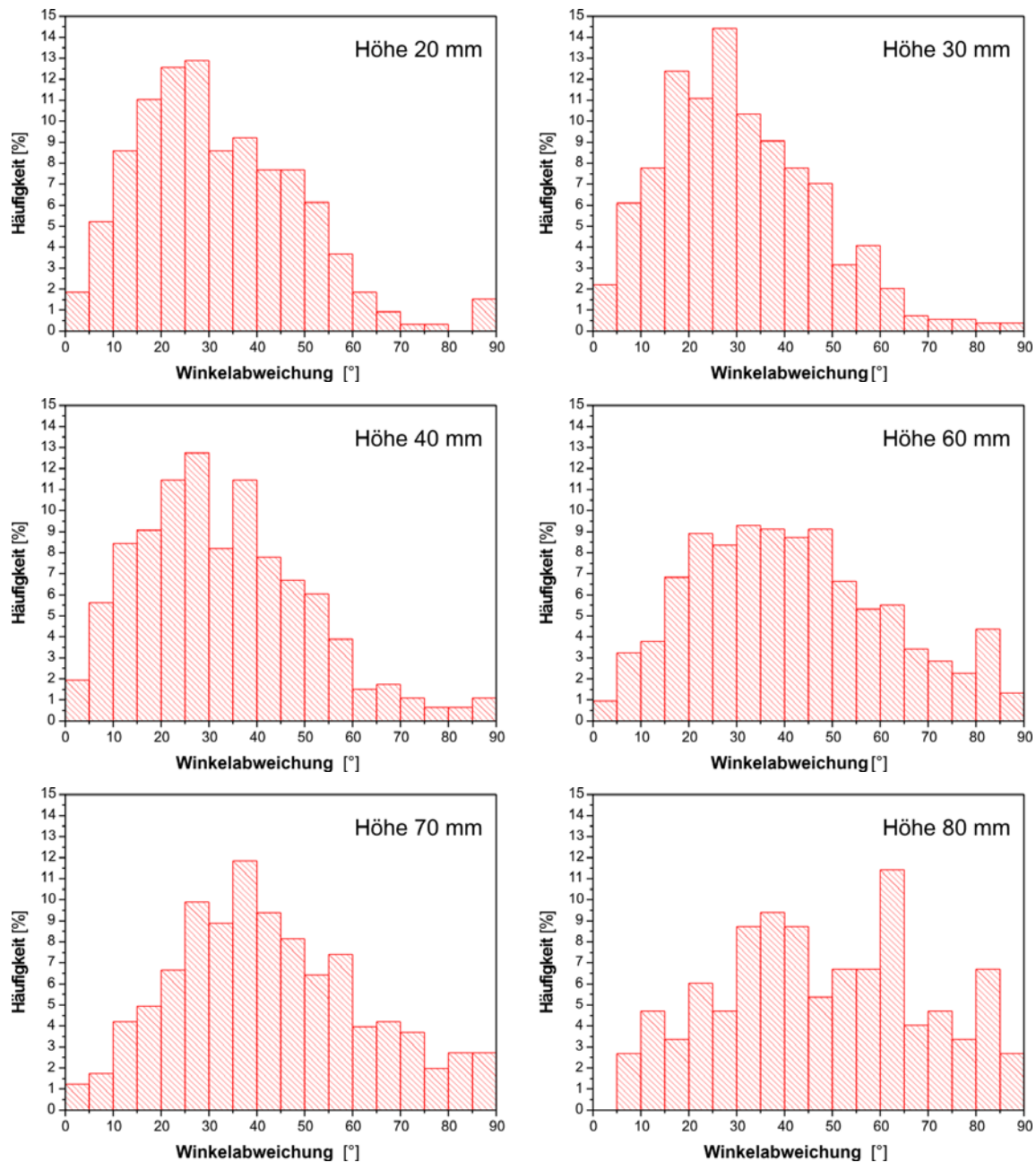


Abb. IV.15: Histogramme der Winkelabweichung des Normalenvektors zur Messlinie. Ein Winkel von 0° entspricht einem optimalen senkrechten Durchgang der Messlinie durch die Flammenfront. Mit zunehmender Höhe über dem Brenneraustritt wird die Verteilung breiter und die relativen Häufigkeiten werden flacher. Zudem verschiebt sich der Wert des am häufigsten auftretenden Winkels zu größeren Werten.

Die Histogramme zeigen, dass mit zunehmender Höhe die Verteilung der beobachteten Winkel breiter wird und damit die relativen Häufigkeiten sinken, was mit der zunehmenden

Durchmischung in der Flamme bei ansteigender Höhe über dem Brenner zusammenhängt. Auch der Wert der am häufigsten auftretenden Winkelabweichung verschiebt sich zu höheren Beträgen.

5 Fehlerabschätzung

Bei der Bearbeitung der vorliegenden Messdaten erwiesen sich vor allem drei Störeinflüsse, die zum Teil schon in Kapitel IV.2 ausführlicher beschrieben sind, als besonders zu beachtende Fehlerquellen:

- Spektroskopische Einflüsse
- Experimentspezifische Einflüsse (z.B. optischer Aufbau)
- Datenverarbeitung (z.B. notwendige Filter- und Korrekturverfahren)

Bei der Bearbeitung der Messdaten wurden große Anstrengungen unternommen um Fehlerquellen, die sich hauptsächlich durch die beiden ersten Punkte ergeben, so weit wie möglich zu erkennen und abzuschätzen. So konnte sichergestellt werden, dass aus der Spektroskopie hervorgehende Einflüsse zumindest so weit reduziert werden konnten, dass sie im Vergleich mit anderen Störquellen weitgehend vernachlässigbar sind (s. Kap. IV.2.2–2.5).

Beim zweiten Punkt spielt vor allem das optische System eine bedeutende Rolle. Nicht nur, dass durch die langen Strahlwege und Vibrationen im Aufbau die Überlagerung der beiden Messebenen erschwert wurde, sondern auch durch die geringe Lichtstärke das Signal stark von Schrotrauschen bestimmt ist. Zudem beeinflusst die erreichbare optische Auflösung des Systems grundlegend die Detailgenauigkeit der Daten. Obwohl die geometrische Skalierung der Bilder etwa $100\ \mu\text{m}/\text{Pixel}$ beträgt, wurde mittels eines kommerziellen Resolution-Targets (edmund Optics) eine optische Auflösung des Systems (Filter, Teleobjektiv, Bildverstärker und Kamera-chip) von etwa $300\ \mu\text{m}$ gemessen. Dies entspricht im Prinzip bereits einem intrinsischen Tiefpass-Filter, der es unmöglich macht, Gradienten zu bestimmen, deren Anstieg über eine Strecke stattfindet die sich unterhalb dieser Schwelle befindet. In dieser Größenordnung bewegen sich auch Einflüsse, die durch Bildverarbeitungsmethoden wie matrizen-basierte Filter entstehen, da die kleinste Filtermatrix eine Größe von 3×3 Pixel (respektive $300\times 300\ \mu\text{m}$) aufweist. Auch der verwendete Gradientenfilter basiert auf einer 3×3 -Matrix.

Vor allem jedoch das Schrotrauschen, hervorgerufen durch eine Mindestansprechschwelle des Bildverstärkers bei schwachen Signalen, beeinflusste die Ergebnisse in dem Maße, dass in der Bildverarbeitung Filterungsschritte notwendig wurden, um zu verhindern, dass die berechneten Gradienten vom Rauschen dominiert wurden. Es wurden verschiedene Filtertypen getestet, jedoch meist wegen Erzeugung starker Artefakte (z.B. Median-Filter) verworfen. Da sich das Rauschen im Frequenzraum auf hohe Frequenzen beschränkt, wurde schließlich ein Fourier-Filter als Glättungsfilter gewählt, der auf die Unterdrückung hoher Frequenzen ausgelegt war. Während bezüglich der Glättung bei Erhaltung der Signalintensitäten gute Ergebnisse erzielt wurden, mussten Abstriche bei der quantitativen Auswertung der Gradienten gemacht werden. Von der Unterdrückung des Rauschens mit hohen Frequenzen sind logischerweise auch steile Gradienten betroffen. Da die Fourier-Filterung erfordert, auch niedrigere Frequenzen bei schwächerer Dämpfung mit einzubeziehen, sind Gradienten mit steilem Anstieg unterschiedlich betroffen. Die Abb. IV.16 zeigt eine Auftragung von Gradienten aus einem Testbild mit künstlich erzeugten Gradienten verschiedener Steilheit. Aufgetragen sind zum einen die Beträge der bestimmten Gradienten nach Filterung in Relation zu den vorgegebenen Beträgen der künstlich erzeugte Gradienten (rot), zum anderen die relative Abweichung bezüglich des vorgegebenen Gradienten (blau).

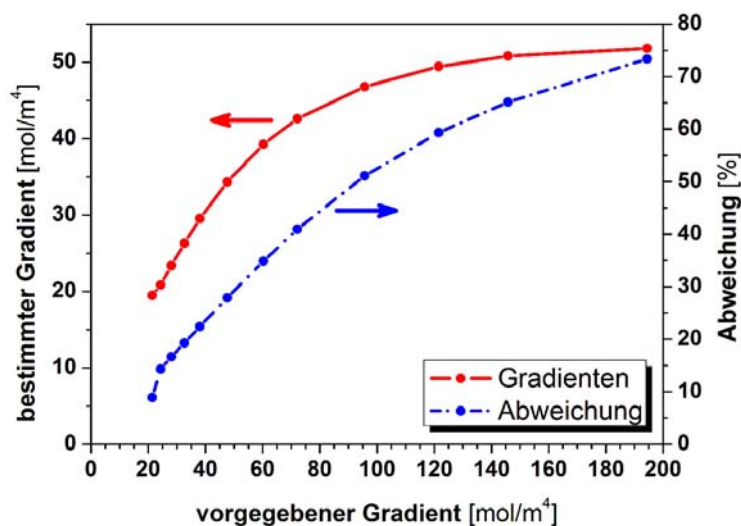


Abb. IV.16: Vergleich von Gradienten aus einem rauschfreien Testbild vor und nach Fourier-Filterung. Die notwendige Filterung der Messdaten zur Unterdrückung von Schrotrauschen bringt zwangsläufig auch eine Unterdrückung steiler Gradienten mit sich. Die rote Kurve stellt die nach Filterung bestimmten Gradienten vorgegebenen künstlich erzeugten Gradienten gegenüber. Durch den Fourier-Filters werden jedoch die steileren Gradienten relativ stark unterdrückt. Die prozentuale Abweichung der gefilterten Gradienten gegenüber den vorgegebenen Gradienten ist als blaue Kurve aufgetragen.

Obwohl die Anwendung des Fourier-Filters im Vergleich zu konventionellen Glättungsfiltren bessere Ergebnisse verspricht, bedarf es weiterer Optimierung der Filtereigenschaften um ein besseres Ergebnis zu erzielen. Hierzu ist jedoch eine Analyse bezüglich der Unterdrückung des Rauschens sowie der Erhaltung der Gradienten notwendig, wobei nicht nur der Bereich der unterdrückten Frequenzen, sondern auch die Stärke der Dämpfung einzelner Frequenzbereiche und die Filterfunktion selbst weiter optimiert werden müssen.

V. Bestimmung von Flammenfronten durch Gradientenanalyse der OH-Verteilung in einem industriellen Gasturbinenbrenner

Das Interesse an Gasturbinen ist in den vergangenen Jahrzehnten kontinuierlich gestiegen, da sie neben ihrem Einsatz in der Luftfahrt (Jet-Strahltriebwerke, Hubschrauberantriebe, Turboprop-Flugzeuge) auch in der Energieumwandlung ein Einsatzgebiet gefunden haben. Stationäre Gasturbinen werden in der Praxis zum Antrieb von Generatoren für Stromerzeugung vor allem in Kombi-(Gas- und Dampf-)Kraftwerken, Verdichtern oder auch leistungsstarken Pumpen eingesetzt (Abb. V.1).

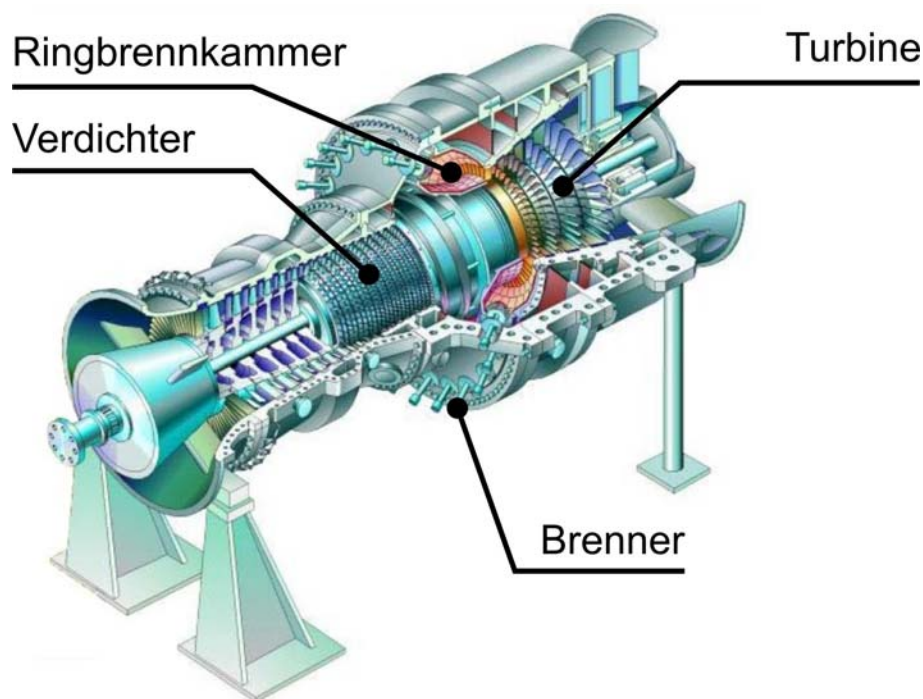


Abb. V.1: Stationäre Gasturbine, wie sie zur Energieumwandlung in Blockheizkraftwerken im Einsatz ist.

Sie gehören zu den *Verbrennungs-* oder *Turbokraftmaschinen*. Als *Strömungsmaschinen* werden sie kontinuierlich, ohne Pulsation durchströmt. Ihr Aufbau gliedert sich prinzipiell in drei Aggregateile: den Verdichter oder Kompressor, die Brennkammer und die Turbine, wobei

Verdichter und Turbine in der Regel auf derselben Welle sitzen (mechanische Kopplung). Das Prinzip ist in Abb. V.2 vereinfacht dargestellt.

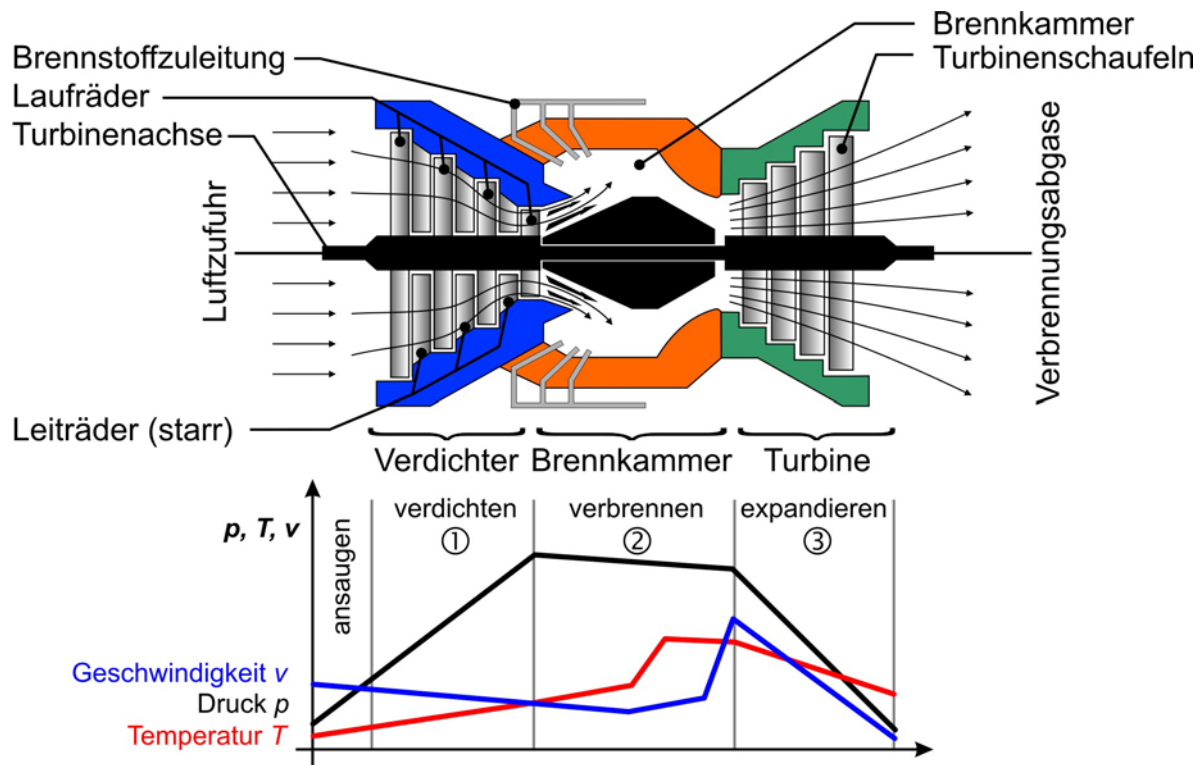


Abb. V.2: Schematische Darstellung einer Gasturbine mit Gliederung des Energie-Umwandlungsprozesses in den einzelnen Aggregateilen. Das Diagramm gibt die Zustandsänderung des Arbeitsgases beim Durchgang durch die Gasturbine wieder.

Der Energieumwandlungsprozess wird anhand der Zustandsänderung des Arbeitsgases hinsichtlich Druck, Temperatur und Geschwindigkeit deutlich (vgl. Diagramm in Abb. V.2). Der Verdichter saugt Luft aus der Umgebung an, verdichtet sie und führt sie schließlich der Brennkammer zu (①). Während des Verdichtens (16-30 bar, Flugturbinen bis 50 bar) nimmt die Temperatur der Luft zu. In der Brennkammer wird sie zusammen mit dem eingespritzten Brennstoff unter nahezu gleichem Druck verbrannt, wobei Verbrennungsgase mit einer Temperatur von bis zu 1700°C entstehen (②). In der nachgeschalteten Turbine expandiert das energiereiche, heiße Abgas annähernd auf Umgebungsdruck (③). Während der Expansion gibt das Abgas Leistung an die Turbine ab. Thermische Energie wird so in mechanische Energie umgewandelt. Zum Antrieb des Verdichters werden ca. 2/3 der erzeugten Leistung benötigt, etwa 1/3 steht als Nutzleistung zur Verfügung. Nach dem Entspannen in der Turbine besitzt das Abgas noch eine Temperatur zwischen 400°C und 600°C, die sehr gut in nachgeschalteten Abhitzeesseln und Dampfkraftwerken genutzt werden kann.

Der Wirkungsgrad einer Gasturbine ist umso größer, je höher die Turbineneintrittstemperatur der Brenngase und vor allem je größer das Druckverhältnis zwischen Brennkammer und Turbinenaustritt ist. Die thermische Belastbarkeit der gekühlten Turbinenschaufeln begrenzt jedoch die Eintrittstemperatur. Der thermische Wirkungsgrad einer Turbine fällt mit 35% relativ gering aus, jedoch können rund 65% der eingesetzten Energie aufgrund der hohen Abgastemperaturen in den Abhitzeesseln z.B. zur Dampferzeugung genutzt werden (Kraft-Wärme-Kopplung z.B. in GuD-(*Gas- und Dampf*)-Kraftwerken). Der Gesamt-Nutzungsgrad beträgt bei einer Nutzung der Abwärme bis auf 100°C etwa 85%. Da sich teilweise noch 15% Restsauerstoff im Abgas befinden, kann der Gesamt-Nutzungsgrad durch eine Nachverbrennung der Abgase auf bis zu 94% angehoben werden. Einheiten mit hoher Betriebsverlässlichkeit sind heute in Größen typisch zwischen 1 und 100 MW erhältlich und daher auch für dezentrale Energieversorgung geeignet. Bei Hochleistungsturbinen können sogar bis zu 270 MW erzielt werden. Obwohl im Erdgas-Betrieb die Schwefeldioxid-Emissionen aufgrund des schwefelarmen Brennstoffes gering sind, fördern die hohen Verbrennungstemperaturen die Bildung von Stickoxiden, da die Stickoxidbildungsrate exponentiell von der Temperatur abhängt (Zeldovich-Mechanismus [101]). Zur Stickoxidminderung werden heute je nach den gesetzlichen Auflagen Verbrennungsmodifikationen, Wasser- oder Dampfeinspritzung oder vor allem in GuD-Kraftwerken selektiv katalytische und thermische Reduktionsverfahren eingesetzt [102, 103]. Eine Grundmodifikation stellt die Umstellung des Betriebes vom klassisch nicht-vorgemischtem Betrieb, bei dem Brennstoff und Verbrennungsluft erst im Brennraum durch starke Turbulenz vermischt werden, zum schadstoffärmeren mager-vorgemischtem Betrieb dar. Hier werden Brennstoff und überschüssige Verbrennungsluft bereits vor der Flammenzone vermischt. Nachteil bei dieser Betriebsweise ist, dass die vorgemischte Flamme nur innerhalb bestimmter stöchiometrischer Zündgrenzen unterhalten werden kann. Das bedeutet, dass zu fette oder zu magere Gas-mischungen nicht brennen. Für Methan liegt die untere Zündgrenze bei ungefähr 5% Brennstoff in Luft. Grundlegende Voraussetzung ist damit, ein möglichst optimales Gasgemisch in den Brennraum einzuleiten. Als Folge ist eine Stabilisierung der Flamme oft schwierig, da ungünstige Zündbedingungen und Temperaturspitzen bei der Verbrennung zu Instabilitäten führen können, die wiederum Oszillationen im System hervorrufen können und den Schadstoffausstoß negativ beeinflussen. Diesem Problem widmen sich auch theoretische Arbeiten in Modellsystemen. Hierbei werden unter anderem die Wechselwirkungen zwischen Verbrennung und Akustik untersucht [104]. Die Ergebnisse aus Modellierung und Simulation liefern grundlegende Informationen, die in Experimenten validiert werden müssen. Dazu

wurden laserdiagnostische Experimente an einem einzelnen Gasturbinenbrenner durchgeführt, die auf die Lokalisierung der Reaktionszone bei verschiedenen Betriebsmodi (nicht-vorgemischt, vorgemischt und vorgemischt mit Pilotierung) des Brenners zielten. Es wurden zu diesem Zweck verbrennungsrelevante Speziesverteilungen (OH) untersucht, um die Position der Flammenfront gezielt in einem Bereich hinter dem Brenneraustritt zu lokalisieren (Kap. V.4.1). Des Weiteren wurde anhand von Speziesverteilungen die Dynamik der Flamme in zwei instationären Betriebszuständen (variables Erdgas/Luft-Verhältnis) anhand von phasenaufgelösten Messungen untersucht (Kap. V.4.2).

1 Bestimmung von Flammenfronten

Bei der Untersuchung von Flammen spielt die Untersuchung verbrennungsrelevanter Spezies eine wichtige Rolle. Sie geben Aufschluss über Frischgas-, Reaktions- und Abgaszonen einer Flamme. Jedoch liefern Untersuchungen von Speziesverteilungen nicht zwangsweise alle Informationen, die bei der Charakterisierung von Flammeneigenschaften von Interesse sind. Besonderes Interesse bei der Charakterisierung von Flammen gilt häufig auch der Lage und Struktur der Flammenfront, dem Bereich, in dem die eigentliche Verbrennung stattfindet und die wichtigsten Schritte bei der Umsetzung des Frischgasgemisches ablaufen (Abb. V.3).

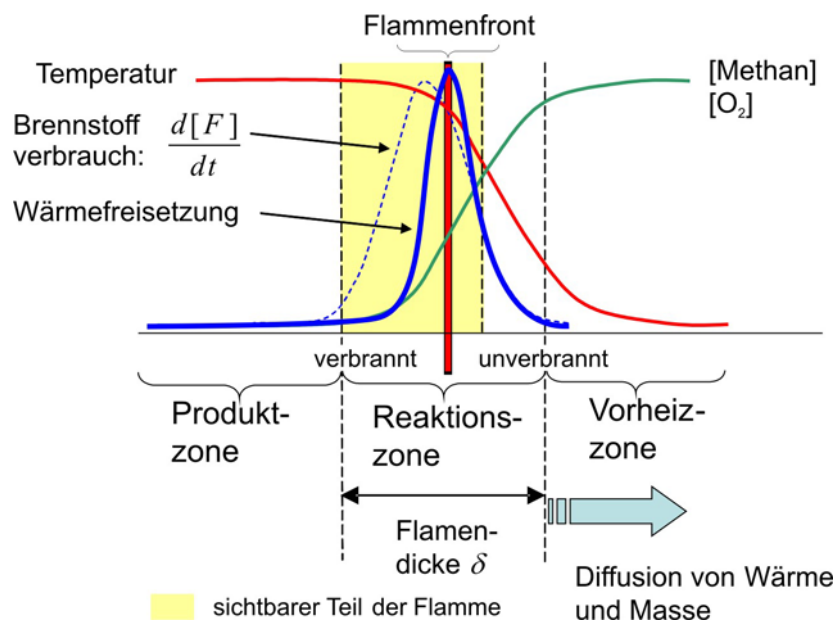


Abb. V.3: Schematische Darstellung der Verhältnisse im Bereich der Flammenfront. Die Flammenfront erstreckt sich nur über einen schmalen Bereich der Reaktionszone. In diesem Bereich ist die maximale Wärmefreisetzung zu beobachten.

Dadurch, dass hier Umsetzungsschritte ablaufen, die den wichtigsten Beitrag zur gesamten Energiefreisetzung in Form von Wärme leisten, liegt in diesem Bereich auch die Region der höchsten Wärmefreisetzung (*peak heat release*). Diese Region umfasst nur einen sehr schmalen Bereich, der sich entlang der Grenzfläche zwischen Frischgas und Abgas erstreckt.

Die lokale Wärmefreisetzung stellt somit eine der interessantesten experimentellen Messgrößen bei der Untersuchung von nicht-stationären reaktiven Strömungen dar. Sie kann jedoch nicht direkt gemessen werden, sondern muss aus physikalischen Messgrößen, wie der Dilatationsrate $\nabla \cdot v$ [105, 106], oder chemischen Messgrößen, wie der Chemilumineszenz angeregter Spezies bestimmt werden. Chemilumineszenz ist die spontane Emission im Sichtbaren oder Nahen-UV-Bereich infolge chemischer Reaktionen. Sie rührt in Flammen hauptsächlich von elektronisch angeregten Molekülen wie CH^* (387 nm und 431 nm, blaues Flammeneigenleuchten), C_2^* (471 nm und 516 nm, türkisgrünes Flammeneigenleuchten), OH^* (308 nm, UV) und CO_2^* (300-500 nm, Kontinuum) her [107-111]. Messungen der Chemilumineszenz nehmen als line-of-sight-Verfahren die gesamte Emission in Blickrichtung auf. Sie sind daher nicht räumlich aufgelöst. Eine präzise Korrelation mit der Wärmefreisetzung ist daher nur in besonderen Fällen möglich [112].

Das Verfahren der laserinduzierten Fluoreszenz liefert dagegen ein Signal nach Anregung eines klar definierten Anregungsbereiches und bei Fehlen der spezifisch angeregten Spezies ist bei geeignetem Anregungs-Detektions-Schema kein Signal zu erwarten. Folglich kommen hauptsächlich zwei-dimensionale LIF-Verfahren zum Einsatz, wenn es darum geht, Flammenfronten und Wärmefreisetzung örtlich aufgelöst zu untersuchen. Verschiedene Spezies wurden in Hinblick auf ihre Korrelationen mit der Zone des höchsten Brennstoffverbrauches und der höchsten Wärmefreisetzung untersucht [112, 113]. In Messungen an einer Methan-Luft-betriebenen laminaren Line-Vortex-Flamme zeigten die unterschiedlichen Spezies mehr oder weniger gute Beziehungen zu der auch im Modell untersuchten maximalen Wärmefreisetzungsgeschwindigkeit (*peak heat release rate*). Während CH-LIF in laminaren Flammen mit dieser ein durchaus gut korreliertes Bild liefert, wird die Bildung von CH bei gekrümmten Flammen deutlich beeinflusst. Bei starker Krümmung der Flammenfront ist zu beobachten, dass das CH-LIF-Signal im Bereich der stärksten Krümmung sogar vollständig verschwindet. Die Reaktion weicht in einem solchen Fall über andere Reaktionskanäle aus. Dies ist möglich, da auch unter Normalbedingungen nur etwa 15% des Kohlenstoffs bei der Verbrennung über CH umgewandelt werden (s. Abb. V.4).

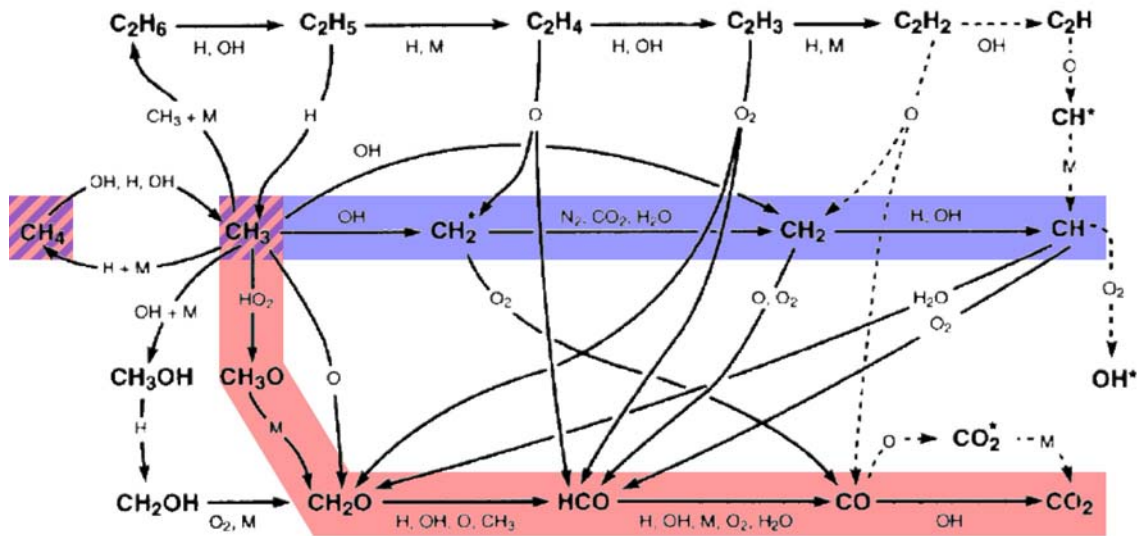
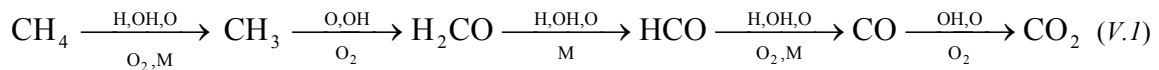


Abb. V.4: Reaktionspfad-Diagramm für eine sich frei ausbreitende vorgemischte Erdgas-Luft-Flamme. Insgesamt etwa 400 Teilreaktionen. Der Reaktionspfad, der ausgehend von CH_3 zur Bildung von CH führt ist blau hervorgehoben. Der für den Kohlenstoffumsatz und die Wärmefreisetzung entscheidende Reaktionspfad verläuft jedoch über HCO zu CO_2 (rot markiert).^f

Ein größerer Teil des Kohlenstoffumsatzes verläuft über einen anderen Reaktionspfad. Etwa 60-90% des umgesetzten Kohlenstoffs werden über den Weg des Formyl-Radikals (HCO) umgesetzt (s. Abb. V.4).



HCO geht direkt aus Formaldehyd (H_2CO) hervor und zeigt eine äußerst gute räumliche wie auch zeitliche Korrelation zur Zone der höchsten Wärmefreisetzung [114]. Diese Beziehung folgt im Wesentlichen aus der gemeinsamen Abhängigkeit der Wärmefreisetzung und des HCO -Vorkommens von der Reaktion:



Einerseits weist diese den größten Einfluss auf die Wärmefreisetzung aus, andererseits ist die Bildung von HCO direkt abhängig von der Verfügbarkeit des Vorläufermoleküls H_2CO .

^f Quelle: Najm, H.N., et al., Combustion and Flame, 1998. **113**(3): p. 312-332.

Das gebildete HCO reagiert sofort mit nahezu jedem anderen Reaktionspartner in der Flamme zu CO und Radikalen. Sein Abbau ist im Vergleich zur Bildungsgeschwindigkeit sehr schnell, wodurch der HCO-Molenbruch im Grunde direkt proportional zu seiner Bildungsrate ist.

Die Detektion von HCO mit laserdiagnostischen Methoden ist jedoch schwierig. Das LIF-Anregungssystem von HCO ist stark prädissoziativ. Das bedeutet, im angeregten Zustand sind Übergänge in einen nicht-bindenden Zustand möglich, die zu einem raschen Zerfall des angeregten Moleküls führen (s. Kap. II.2.6.1). Dies hat als Konsequenz, dass das messbare LIF-Signal zu schwach für instantane Messungen ist. Dieser Nachteil lässt sich umgehen, wenn man sich zunutze macht, dass HCO über seine Vorläufermoleküle H₂CO und OH beschrieben werden kann, da der geschwindigkeitsbestimmende Schritt bei der Bildung von HCO direkt von dem Vorhandensein von H₂CO abhängig ist [114].

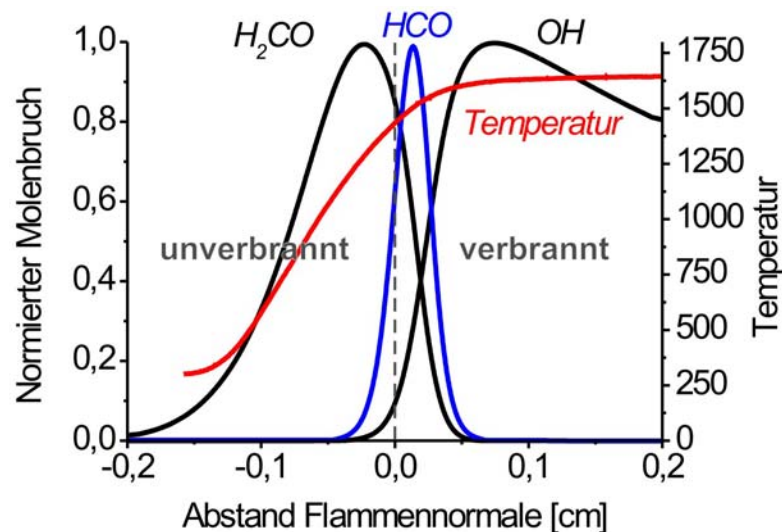


Abb. V.5: Bildungszone von HCO. Nur im Überlappungsbereich von H₂CO und OH ist die Reaktion zu HCO möglich.[§]

Dazu werden simultan die instantane H₂CO- und OH-Verteilung gemessen. Beide Moleküle sind spektroskopisch gut bekannt und leicht zugänglich.

[§] Quelle: Najm, H.N., et al., Combustion and Flame, 2001. **125**(1/2): p. 879-892.

Anschließend lässt sich das Produkt der beiden LIF-Signale bilden, welches den Überlappungsbereich von H_2CO und OH wiedergibt und den relativ schmalen Bereich beschreibt, in dem die Bildung von HCO überhaupt möglich ist (Abb. V.5). Der Aufwand, den diese Methode erfordert, ist jedoch relativ hoch, da für den Erhalt einer Zielgröße (Wärmefreisetzung) zwei Spezies simultan gemessen werden müssen. Bedenkt man zudem, dass es sich bei dem zu untersuchenden Objekt um einen Brenner technischen Maßstabs handelt, stellt das schwache Signal von H_2CO ein nicht zu unterschätzendes Problem dar. Andererseits weist aber die beschriebene Methode auch darauf hin, dass die gesuchte Information bereits in den OH -LIF-Verteilungen zu finden ist. Ist man in erster Linie an strukturellen Informationen über die Flammenfront interessiert und verzichtet auf quantitative Ratenbestimmungen, so kann man die Flammenfront als einen sehr schmalen Bereich innerhalb des OH -Vorkommens ausmachen, welcher im direkten Kontaktbereich von Reaktionszone und Frischgas liegt. Da das OH -Vorkommen in diesem Bereich aber auch durch einen sehr steilen Anstieg des Gradienten der Spezieskonzentration charakterisiert ist, kann dieser steile Anstieg durch Gradientenfilter (Laplace- oder Sobelfilter) im Rahmen der Bildverarbeitung separiert und dargestellt werden [62]. In diesem Fall ist nur die Messung einer Spezies (OH) notwendig, welche zudem noch spektroskopisch gut charakterisiert und in vielfältiger Weise laserdiagnostisch zugänglich ist.

Die anhand der genannten Methode zu erhaltende örtliche Auflösung ist für eine detaillierte Beschreibung der Flammenfront nicht ausreichend, da diese nur eine Dicke von wenigen hundert Mikrometern aufweist. Abhängig von der experimentellen Fragestellung ist diese Ortsauflösung jedoch auch nicht zwangsweise notwendig. Im vorliegenden Fall geht es um eine Lokalisierung der reaktiven Zone in einem technischen Großgerät. Eine Ortsauflösung von weniger als 2 mm ist bei einer Untersuchung eines ausgedehnten Messbereiches wie im beschriebenen Experiment bei weitem ausreichend. Die tatsächlich mögliche Ortsauflösung liegt in einer Größenordnung von etwas weniger als 1 mm, wurde aber aus noch später genannten Gründen (Kap. V.3.4) nicht ausgenutzt. Aus den oben geschilderten Gründen war somit die Vorgehensweise über die Gradientenbestimmung im OH -Vorkommen die Methode der Wahl für das angestrebte Experiment, das im Folgenden näher beschrieben wird.

2 Experimenteller Aufbau

2.1 Brenner und Versuchsstand

Bei dem untersuchten Brenner handelt es sich um einen Modellbrenner eines Hybridbrennerkonzeptes, wie es in stationären Kraftwerks-Gasturbinen Verwendung findet. Die Anlage wird als Hybridbrenner bezeichnet, weil der mit Erdgas gefeuerte Brenner sowohl mit Diffusions- wie auch Vormischflamme betrieben werden kann. Gasturbinen enthalten in der Regel eine größere Anzahl dieser Brenner, die ringförmig um die Brennkammer angeordnet sind. Gasturbinen dieses Typus können eine Gesamtleistung von 270 MW und mehr erzielen. Die Diffusionsflamme findet hauptsächlich in der Anfahrphase der Turbine und bei niedriger Teillast Verwendung, während die Vormischflamme aufgrund ihres geringeren Schadstoffausstoßes bei größerer Leistung bevorzugt wird.

Der Aufbau des Brenners ist aus Abb. V.6 ersichtlich.

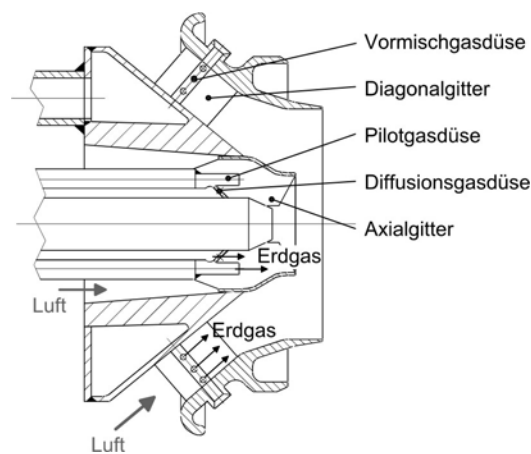


Abb. V.6: Aufbau des Brennerkopfes.^h Das innere Axialgitter mit Pilotgasdüsen ist von dem Diagonalgitter umgeben. Das Erdgas wird im Vormischbetrieb über die Bohrungen in den Schaufeln des Diagonalgitters in die Strömung eingebracht.

Der Brenner enthält zwei Drallgitter, die von der Verbrennungsluft durchströmt werden. Das axiale Drallgitter aus sechs Schaufeln sitzt nahe der Brennermitte. Die Düsen, aus denen das Erdgas ausströmt, sitzen nahe der Brennerachse. Zusätzlich sitzen zwischen den Schaufeln

^h Quelle: Schildmacher, K.-U., Dissertation, 2005, ITS, Universität Karlsruhe.

Pilotgasdüsen, die bei Bedarf zur Stabilisierung zugeschaltet werden können. Umgeben ist das Ganze von einem Diagonalgitter, das aus rund 20 Schaufeln besteht.

Im Diffusionsbetrieb strömt das Erdgas aus den Düsen am Axialgitter, die sich nahe der Brennermitte befinden und vermischt sich in der Brennkammer mit der Verbrennungsluft, die überwiegend über das Diagonalgitter einströmt. Für den Vormischbetrieb dagegen befinden sich jeweils fünf Bohrungen auf der Druck- und Saugseite jeder Schaufel des Diagonalgitters („*jet in cross flow*“) über die das Erdgas der Verbrennungsluft beigemischt wird. Auf dem Weg zum Brenneraustritt kommt es zur Vermischung von Brennstoff und Verbrennungsluft.

Die verdrallte Luft beider Drallgitter verlässt den Brenner mit einer Drallzahl von $S = 0,5$ im Auslegungspunkt (Betriebsbedingungen vergleichbar mit der originalen Turbine), wobei sich die Luft unabhängig von der Betriebsart zu etwa 90% auf das Diagonalgitter und nur zu etwa 10% auf das Axialgitter verteilt. Somit trägt auch der axiale Brenner nur wenig zur produzierten Leistung bei und dient hauptsächlich zur Stabilisierung der Flamme während der Übergangsphasen oder in instabilen Phasen [115, 116].

Der Versuchsstand am Institut für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karlsruhe wurde speziell für Messungen an dem Brenner konzipiert, da Untersuchungen in Ringbrennkammern, wie der originalen Gasturbine durch die hohen Massenströme sehr kostenintensiv sind und sich bauartbedingt optische Zugänge nur sehr schwer realisieren lassen.

Ein Ausschnitt aus dem Versuchsstand ist in Abb. V.7 dargestellt und zeigt Brennervorkammer (Plenum), Brennerkopf und Brennkammer.

Die Verbrennungsluft wird mit geringem Überdruck über einen elektrischen Luftvorwärmer dem Plenum mit dem eingebauten Brenner zugeführt. Überschüssige Luft wird zur Kühlung der Brennkammeraußenwand verwendet.

Für die geometrische Auslegung der Brennkammer wurde ein quadratischer Querschnitt gewählt, da dieser in etwa einem Brennkammersegment einer Ringbrennkammer entspricht. Ferner wurde auf ein korrektes Verhältnis von Brenneraußendurchmesser zu Brennkammerquerschnitt wie in der realen Gasturbine geachtet. Die Brennkammer hat eine quadratische Grundfläche mit einer Seitenlänge von 350 mm, eine Länge von 710 mm und läuft am Austritt pyramidenförmig zu.

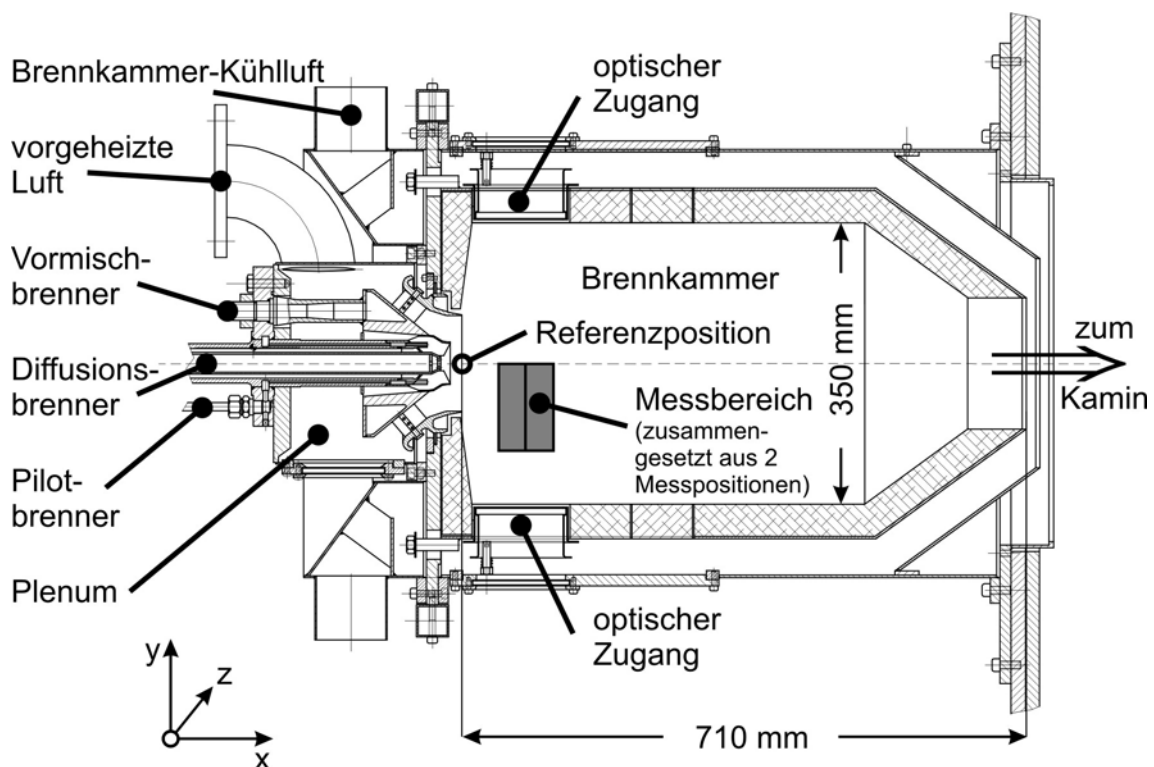


Abb. V.7: Aufbau der Brennkammer mit Plenum. Über die unterschiedlichen Zuführungen werden die jeweiligen Gasdüsen für die entsprechende Betriebsart mit Erdgas versorgt. Die vorgeheizte Luft wird in einem festen Verhältnis auf Axial- und Diagonalgitter verteilt. Die Kammer besitzt an allen 4 Seiten nahe dem Brennerkopf optische Zugänge für laserdiagnostische Methoden. Das graue Rechteck bezeichnet den Bereich der Messungen mittels laserinduzierter Fluoreszenz. Die Größe des gesamten untersuchten Messfeldes betrug $68 \times 108 \text{ mm}^2$ und setzte sich aus zwei überlappenden Messfeldern zusammen.ⁱ

Um in den Experimenten vergleichbare Bedingungen zu der realen Turbine zu erhalten, wurde der Luftvolumenstrom \dot{V} der Verbrennungsluft so gewählt, dass er dem eines Einzelbrenners der Turbine im Auslegungspunkt, jedoch bei Atmosphärendruck, entspricht. Die Vorwärmtemperatur betrug 673 K, was der Temperatur am Brenneintritt nach der polytropen Kompression durch den Verdichter der Gasturbine auf einen Druck von 16 bar entspricht. Der Brennstoffmassenstrom ist über das vorgegebene Äquivalenzverhältnis (Erdgas/Luft) Φ festgelegt. Die Reynoldszahl am Brenneraustritt beträgt $Re_0 = 10^5$. Die thermische Leistung liegt zwischen 420 kW bei einem Äquivalenzverhältnis $\Phi_0 = 0,5$ und 810 kW bei $\Phi = 0,83$. $\Phi_0 = 0,5$ entspricht auch dem Äquivalenzverhältnis bei dem die Turbine betrieben wird (Auslegungspunkt).

ⁱ Quelle: Schildmacher, K.-U., Dissertation, 2005, ITS, Universität Karlsruhe (überarbeitet).

2.2 Laseranregung und optischer Aufbau

Für die Flammenfront-Messungen mittels des steilsten Gradienten von OH wurde in diesem Experiment ein Aufbau bestehend aus einem XeF-Excimerlaser (EMG150 EST, Lambda Physik) zur Anregung der $Q_1(3)$ -Rotationslinie von OH im $A-X(0,0)$ -Band bei 308,15 nm [23] und einer bildverstärkenden Kamera (Flamestar III, LaVision) verwendet.

Der angeregte Übergang besitzt die höchste Übergangswahrscheinlichkeit für Absorption ($B_{12} = 1,009 \cdot 10^{18} \text{ m}^3 \text{ J}^{-1} \text{ s}^{-2}$) im Abstimmbereich des Lasers und ist dadurch besonders zur Detektion von niedrigen OH-Konzentrationen geeignet [22, 43]. Die Emission des angeregten Zustandes kann in drei Emissionsbereiche eingeteilt werden: rotverschobene, blauverschobene und resonante Fluoreszenz. Die frequenzverschobenen Emissionen stammen aus Übergängen in höher angeregte Zustände des X -Niveaus bzw. aus höheren Energiezuständen des angeregten Zustands nach Energieübertrag aus Stößen mit anderen angeregten Molekülen. Die resonante Emission ist dagegen nicht durch Energietransferprozesse beeinflusst und somit in ihrer Frequenz identisch mit der Anregungsfrequenz. Weitere Details, wie das Energieschema des hier beschriebenen Überganges, finden sich in Kapitel II.2.6.3.

Die Detektion im Experiment erfolgte breitbandig. Lediglich das Raumlicht wurde über einen Kurzpass-Kantenfilter unterdrückt. Dadurch konnte man sich das relativ starke Fluoreszenzsignal aufgrund der hohen Absorptionswahrscheinlichkeit zunutze machen. Möglich war dies, da die Zielgabe des Experimentes nicht auf der Bestimmung absoluter OH-Radikalkonzentrationen lag, sondern die strukturelle Untersuchung der Flamme und die Bestimmung der Flammenfronten im Vordergrund stand. Da Letztere aus den steilsten Gradienten von OH-LIF-Signalen bestimmt werden sollten, konnten spektroskopische Einflüsse wie Temperaturabhängigkeit des LIF-Signales, VET, RET und Quenching weitgehend außer Acht gelassen werden, da sie die Bestimmung des Gradienten des LIF-Signales nicht in bedeutendem Maße beeinflussten. Daher sind in den Resultaten in den Kapiteln V.4.1 und V.4.2 nur relative LIF-Intensitäten angegeben. Da bei dem beschriebenen Detektionsschema Licht der gleichen Wellenlänge wie der Anregungswellenlänge aufgenommen wird, muss strikt darauf geachtet werden, dass Streulicht im Hintergrund, welches durch Reflexion des Lasers oder von Signallicht an optischen Elementen, wie Fenstern, sowie an nicht-optischen Elementen, wie Montagerahmen und Schamottauskleidung des Brennerinnenraumes, hervorgerufen wird, vermieden wird.

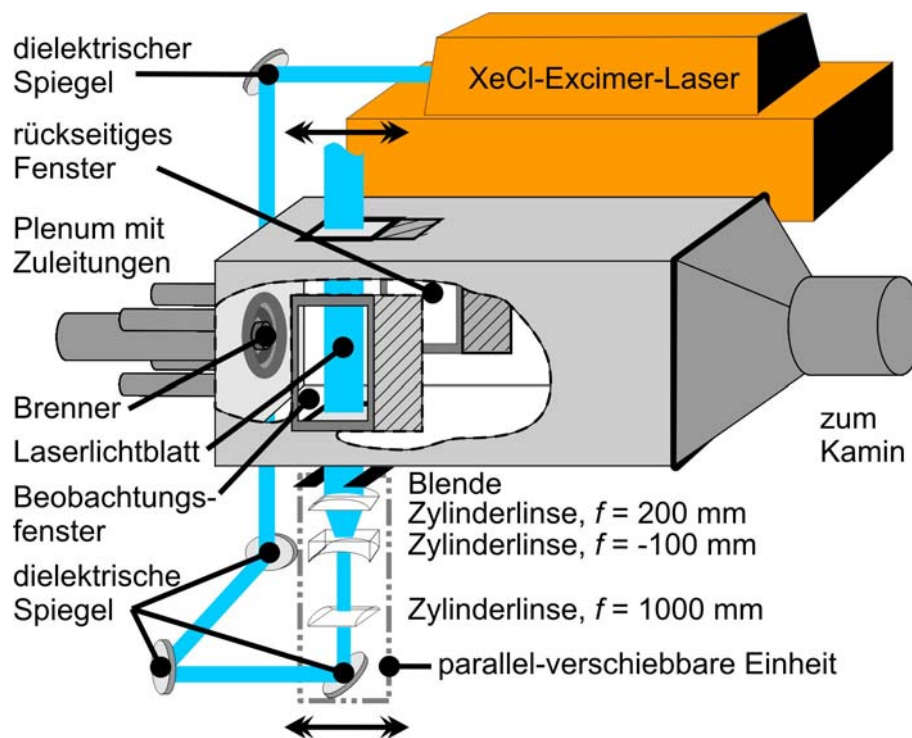


Abb. V.8: Übersicht über den optischen Aufbau. Der Strahl eines XeCl-Excimer-Lasers wurde über eine Linsenoptik in einer Richtung aufgeweitet und senkrecht dazu zu einem dünnen Laserlichtblatt fokussiert. Die schraffierten Bereiche neben den Fensteröffnungen markieren die optionalen Fenster-Montagepositionen, die jedoch nicht zum Einsatz kamen. Die Optikeinheit unterhalb des Brenners ist horizontal verschiebbar um zwei Laserpositionen innerhalb einer Fensterposition zu ermöglichen. Die Kamera ist der Übersichtlichkeit wegen in dieser Darstellung weggelassen.

Der optische Aufbau des Experimentes war wie folgt gestaltet (s. Abb. V.8): Der Strahl des Lasers wurde mittels dielektrischer Spiegel zur Brennkammer gelenkt. Diese war für optische Experimente mit doppelschichtigen Quarz-Fenstern mit interner Wasserkühlung versehen, die in ebenfalls wassergekühlten Metallrahmen montiert waren. Die Brennkammer besaß optische Zugänge von oben und unten und zu beiden Seiten der Kammer hin. Die Position der Fenster konnte im Bereich hinter dem Brenner in drei Positionen durch Umsetzen der Fenster und der Schamottisolierung variiert werden, um so einen weiteren Teil der Flamme untersuchen zu können (schraffierter Bereich rechts neben dem Beobachtungsfenster in Abb. V.8). Für die vorliegenden Messungen war die vorderste Montageposition der Fenster gewählt worden und erwies sich als ausreichend für die angestrebten Untersuchungen. Die optische Strahlführung war wie folgt gestaltet: Der vom Laser kommende Strahl wurde unterhalb der Brennkammer mittels einer Kombination von Zylinderlinsen zu einem ca. 5 cm breiten und ca. 300 μm dicken Laserlichtblatt aufgeweitet und fokussiert und in vertikaler Richtung von unten nach oben durch die Kammer geführt. Zur Aufweitung des Strahls entlang der langen Achse des Lichtbandes diente ein Teleskop, bestehend aus einer plankonkaven ($f = -100$ mm) und einer plankonvexen

($f = 200$ mm) Zylinderlinse. Zur Fokussierung des Laserlichtblattes entlang der schmalen Achse ins Probevolumen wurde eine plankonvexe Zylinderlinse ($f = 1000$ mm) verwendet. Das Teleskop mit der darunter liegenden Fokussierlinse, sowie der Umlenkspiegel unterhalb der Anordnung waren fest zu einer Einheit verbunden, welche horizontal entlang der Brennerachse verschoben werden konnte. Dadurch ließen sich die beiden hintereinander liegenden Messpositionen leicht anfahren (Abb. V.9).

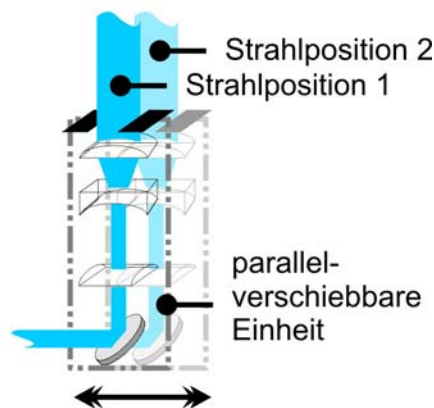


Abb. V.9: Ausschnittsvergrößerung der horizontal verschiebbaren Optikeinheit bestehend aus Umlenkspiegel, Fokussierlinse, Teleskop und Blende. Durch Verschieben der Einheit wurde die Strahlposition innerhalb des Betrachtungsfeldes der Kamera über zwei überlappende Messpositionen variiert.

Die Verwendung des Teleskops erlaubte, in einer Position einen größeren Bereich in der Flamme zu untersuchen, und so die Zahl der notwendigen Messeinstellungen, welche den interessanten Teil der Flamme abdecken sollten, auf zwei zu reduzieren. Die Verwendung der Teleskopanordnung erlaubt ferner bei sorgfältiger Justage, auch trotz Aufweitung die parallele Strahlausbreitung des Laserstrahles zu erhalten, wodurch die spätere Bearbeitung der Messergebnisse sehr vereinfacht wird. Die Zuführung des Laserstrahls von unten war gewählt worden, um die notwendige Optik stabil und unabhängig von anderen Aufbauten fixieren zu können. Außerdem waren die optischen Zugänge auf den unteren Teil der rotationssymmetrischen Flamme ausgerichtet. Durch die so gewählte Strahlführung wurde zum einen ein unnötig langer Weg durch die Flamme, welcher zu Absorptionseffekten hätte führen können, vermieden. Zum anderen sollte dadurch erreicht werden, den Strahlweg in der Brennkammer, vor dem Durchgang durch den Detektionsbereich, möglichst kurz zu halten, da so die Einflüsse von Strahlablenkungen aufgrund von starken Dichteunterschieden im Bereich der Flamme vermindert werden konnten.

Die Detektion des LIF-Signals erfolgte über ein Seitenfenster. Die dort positionierte Kamera, in Abb. V.8 der Übersichtlichkeit wegen nicht eingezeichnet, war mit einem UV-Objektiv ($f = 100$ mm, $f_{\#} = 2$, Halle) und einem UV-Filter (UG11, 3 mm, Schott) ausgestattet, um Raumlicht zu unterdrücken und breitbandig die Fluoreszenz zu detektieren (s.o.). Um störendes Streulicht im Hintergrund des Aufnahmebereiches zu reduzieren, war in der Kammer auch gegenüber der Kamera ein Fenster angebracht worden, um Streuung von Laser und Signallicht durch den porösen hellen Schamottstein weitestgehend zu vermeiden. Durch die notwendige Intensivkühlung war die mögliche Dimensionierung jedoch eingeschränkt. Dies hatte deutliche Auswirkungen auf die notwendigen Maßnahmen zur Korrektur der Daten in der Auswertung. Im folgenden Kapitel wird näher darauf eingegangen.

3 Verarbeitung der Daten

Da es sich bei den hier durchgeführten Messungen um qualitative Messungen zur Lokalisierung der Flammenfront handelte, waren keine Zusatzmessungen für eine Quantifizierung notwendig. Das Hauptaugenmerk bei der Auswertung der Daten lag somit auf der korrekten Lokalisierung des Messbereiches und der Bestimmung der steilsten Gradienten der detektierten OH-Vorkommen in der Flamme sowie notwendigen Eingriffen um das gewünschte Messsignal von störender Hintergrundstrahlung zu befreien.

Um gegebenenfalls Korrekturen der gemessenen Ergebnisse zu ermöglichen, wurden parallel zu den Messungen unterschiedliche Korrekturbilder, wie z.B. Streulicht des Lasers in der nichtreaktiven Strömung und Flammeneigenleuchten, zu unterschiedlichen Zeitpunkten aufgenommen. Somit war es möglich, Veränderungen des Störsignals während eines Messtages erkennbar zu machen, die z.B. auf einer fortschreitenden Schädigung der Fenster beruhten, welche extremen Bedingungen ausgesetzt waren.

3.1 Kalibrierung der Messposition

Zur Lokalisierung der Messposition wurde ein Raster-Maßstab eingesetzt. Er bestand aus einem feinen Kreuzraster und Markierungspunkten zur Orientierung. Dieser Maßstab wurde an definierter Stelle in der Brennkammer angebracht und mit der Kamera aufgenommen. Er wurde später zur örtlichen Kalibrierung der Messbilder herangezogen. Ferner erlaubt er bei Bedarf, die

gemessenen Bilder softwaregestützt über eine Multiparameteranpassung zu entzerren (Software DaVis, Lavision). Dieser Maßstab war so bemessen, dass er den gesamten beobachteten Bereich abdeckte und so eine gegenseitige Ausrichtung der beiden Messpositionen im Fall der stationären Messungen erlaubte.

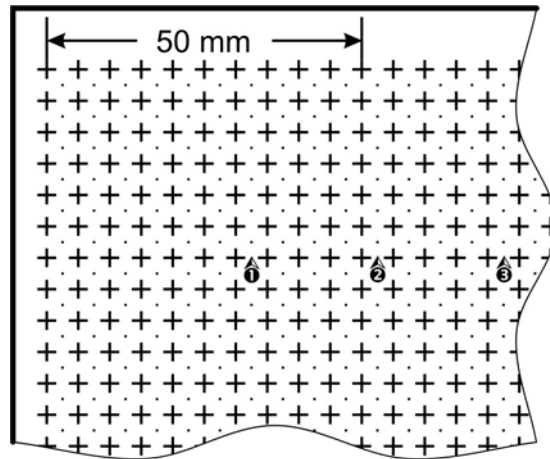


Abb. V.10: Ausschnitt aus dem verwendeten Rastermaßstab. Anhand des Kreuzrasters und definierter Referenzpunkte ist eine softwaregestützte örtliche Kalibrierung der gemessenen Bilder möglich. Über eine Multiparameteranpassung wird zudem eine Korrekturfunktion für das aufgenommene Kamerabild errechnet, anhand deren eine mögliche Verzerrung des Bildes korrigiert wird.

3.2 Korrektur von Störungen durch Streulicht

Ein besonderes Augenmerk galt der Korrektur von störender Hintergrundstrahlung. Da ein resonantes Anregungs-Detektions-Schema gewählt worden war (s. Kap. V.2.2), um von den hohen Fluoreszenzintensitäten zu profitieren, musste mit Signalbeiträgen durch elastisches Streulicht gerechnet werden, das durch Reflexionen des Lasers oder von Fluoreszenzlicht an umgebenden Teilen innerhalb der Brennkammer (Fensterrahmen, Schamott) auftreten kann. Beim experimentellen Aufbau (Abb. V.8) war darauf geachtet worden, durch sorgfältige Justage der Strahlführung Streulicht in der Brennkammer zu vermeiden. Trotzdem zeigte sich, dass Streulicht nicht hundertprozentig unterdrückt werden konnte. Vor allem die Tatsache, dass das Seitenfenster auf der der Kamera gegenüberliegenden Seite wegen der notwendigen intensiven Kühlung der Fenster nicht beliebig groß dimensioniert werden konnte, führte dazu, dass eine schwankende Streuung vom Fensterrahmen die Bildaufnahme beeinträchtigte. Der Einfluss der Streuung wurde unter verschiedenen Bedingungen untersucht. Hierbei wurde zum einen die

reine Streuung des Laserlichts in der Kammer in der nichtreaktiven Luftströmung aufgenommen, sowie der Anteil von Flammeneigenleuchten ohne Lasereinwirkung untersucht. Letzteres spielte, wie sich ergab, keine bemerkenswerte Rolle. Zudem konnte während der Auswertung der Messungen beobachtet werden, welchen Einfluss die Flamme selbst auf die Streuung hatte. Es zeigte sich, dass bei brennender Flamme ein zusätzlicher Beitrag an Untergrund aufgrund von Streuung von LIF-Signal zu beobachten war. Dieser unterlag, abhängig von der momentanen Struktur der Flamme und der Größe und Stärke des OH-Vorkommens, relativ starken Schwankungen. So lag die Hintergrundstrahlung bei den vorgemischten Flammen qualitativ in der Gesamtheit etwas höher als bei der Diffusionsflamme. Dies lässt sich auf die unterschiedliche Flammenform und das großflächigere Vorkommen von OH in den vorgemischten Flammen zurückführen (siehe dazu die Ergebnisse in Kapitel V.4). Bei der Betrachtung zeigten sich zwei Einflüsse: Man findet hauptsächlich einen gleichmäßigen Anstieg der Streustrahlung im gesamten Aufnahmebereich, der vermutlich durch diffuse Streuung entsteht, sowie einen Anteil, der wohl auf Reflexion an unterschiedlich beschaffenen Oberflächen im Hintergrund des Aufnahmebereiches zurückzuführen ist. Darüber hinaus wurden während den instationären Messungen Veränderungen im Streuverhalten der Fenster beobachtet, die auf eine langsame Verschmutzung bzw. auch Zerstörung im Verlauf einer Messserie zurückzuführen waren. Somit lassen sich die folgenden Störeinflüsse zusammenfassen und in zwei Gruppen untergliedern:

- Diffuse Streuung, welche zu einer (relativ) gleichmäßigen Varianz der Gesamthintergrundstrahlung des Aufnahmebereiches führt:
 - Diffuse Streuung von Laserlicht
 - Diffuse Streuung von Signallicht
- Reflexion an unterschiedlich beschaffenen Oberflächen, deren Einfluss stark abhängig von der Beschaffenheit der Oberfläche und dem Einfallswinkel des einfallenden Lichtes ist, oder Streuung an sich verändernden Oberflächen:
 - Reflexion von Signallicht (abhängig von Ort und Stärke des Signals, von unterschiedlicher Reflektivität z.B. von Schweißnähten oder Schleifstellen des gegenüberliegenden Fensterrahmens)
 - Reflexion/Streuung von Laser-/Signallicht an der rückwärtigen Fensterscheibe (abhängig von der Laserposition, Messposition 1 bzw. 2; vgl. dazu

Hintergrund in den zusammengesetzten Ergebnisbildern der unterschiedlichen Messungen in Kap. V.4)

- Zeitlich veränderliches Streuverhalten, z.B. durch Beschädigungen der Fenster

Die Gliederung der oben genannten Einflüsse in zwei Gruppen lässt sich aus einem eindeutigen Grund treffen: Während eine gleichmäßige zeitliche Varianz der Hintergrundstrahlung über das gesamte betrachtete Detektionsfeld korrigiert werden kann, ist eine Korrektur lokal stark schwankender oder sich zeitlich verändernder lokaler Störungen nicht möglich. Der Tatsache, dass zumindest der Einfluss der diffusen Streuung korrigiert werden kann, wurde in der Auswertung Rechnung getragen, indem in einem Korrekturschritt in jedem Einzelbild ein gewichteter Hintergrund abgezogen wurde, der aus den oben genannten Streulichtmessungen erstellt worden war (Abb. V.11).

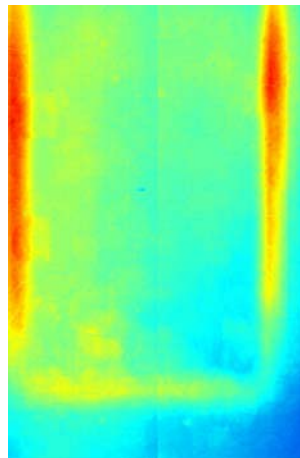


Abb. V.11: Störreflexe. Das Bild gibt grob den Hintergrund wieder, der in den Einzelbildern gewichtet korrigiert werden musste. Die stärksten Störungen, im Bild rot dargestellt, stammen vom Rahmen des rückwärtigen Fensters. Lokale Schwankungen der Streuung, die sich nur auf Bildteile auswirkten, konnten nicht korrigiert werden.

Der primäre Zweck dieses Korrekturschrittes war das Entfernen des Streulichtes, welches durch die im Hintergrund liegende inhomogene Oberfläche (Fensterrahmen) hervorgerufen wurde. Da das Ziel der Datenauswertung die Bestimmung von Flammenfronten war, würde jeder, auch im Hintergrund der Aufnahme liegende Intensitätsgradient durch die Auswerteroutine als Signalgradient detektiert werden und zu verfälschten Ergebnissen führen. Dagegen spielt ein gleichmäßiger höherer Signaluntergrund für die Bestimmung der Flammenfronten keine Rolle, da dieser ohnehin in der Datenverarbeitung durch eine Offset-Korrektur (Subtraktion eines konstanten Intensitätswertes) entfernt wurde. Die Störsignalunter-

drückung diene somit in erster Linie der Korrektur von „strukturiertem“ Störsignal, welches die spätere Gradientenbestimmung (s. Kap. V.3.4) stören würde.

Auf die beschriebene Weise konnte letztlich ein großer Teil des Störsignals nachträglich korrigiert werden. Sogar der Restanteil an Streustrahlung, vor allem derjenige, der sich nur auf einen Teil des Aufnahmebereiches auswirkte, ließ sich im Einzelbild unerwartet gut korrigieren. Dort war er teilweise kaum mehr erkennbar. Dennoch trat er aber in den gegen Ende der Auswertung aus den Einzelaufnahmen angefertigten Mittelwertbildern des OH-LIF-Signals wieder deutlicher hervor, da hier auch schwächere Inhomogenitäten des Signals sichtbar werden. Weitere Korrekturversuche, auch diesen Anteil zu eliminieren, führten jedoch zu keinem Ergebnis, da für diesen Zweck keine Korrekturinformationen zugänglich waren. Bereiche, auf die dies zutrifft, sind im Ergebnisteil daher markiert und zusätzlich erläutert.

3.3 Störungen des Strahlprofils

Ein weiterer störender Effekt, der bei Flammen mit hoher Leistungsdichte zu beobachten ist und häufig zu unerwünschten Störungen führt, ist der der Strahlablenkung aufgrund von Dichteschwankungen („beam steering“, [117, 118]). Es handelt sich um eine lokale Richtungsänderung einfallender Laserstrahlen vor allem an der Flammenfront, da hier starke Temperatur- und Dichtegradienten vorliegen. Das Resultat dieses Störeinflusses ist in zwei-dimensionalen Messungen gut zu erkennen. Er macht sich durch Streifen im Laserlichtblatt entlang der Strahlrichtung bemerkbar (Abb. V.12).

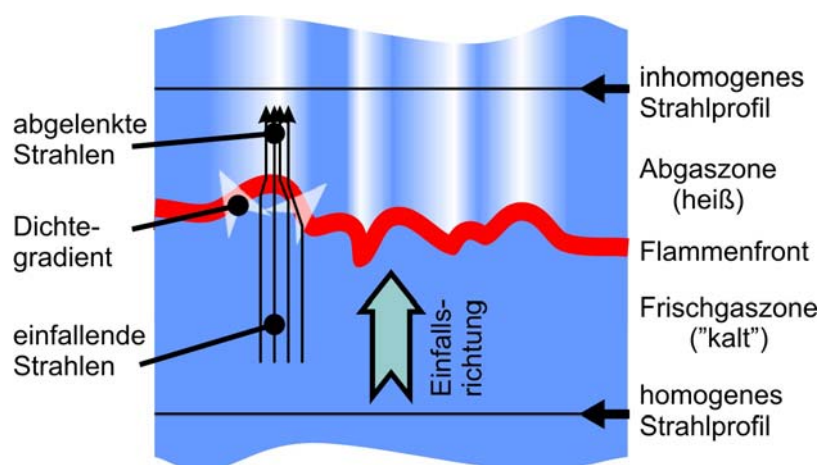


Abb. V.12: Entstehung eines inhomogenen Strahlprofils aufgrund von Beugung an Dichtegradienten („beam steering“) im Bereich der Flammenfront. Längs der Ausbreitungsrichtung entsteht ein Streifenmuster durch Intensitätsunterschiede im Strahlprofil, welche Auswirkungen auf das detektierte Signal haben. Mit den Fluktuationen der Flammenfront variiert auch das Intensitätsprofil.

Es handelt sich dabei um Intensitätsschwankungen im Anregungsstrahl senkrecht zur Strahlrichtung, die sich in gleicher Weise auch auf das Signal auswirken, da die LIF-Signalarintensität von der einfallenden Laserintensität abhängt. Üblicherweise werden Intensitätsschwankungen im Laserprofil korrigiert, indem das Streulicht des Laserstrahls in Luft bei konstanter Temperatur oder das Fluoreszenzlicht eines homogen verteilten fluoreszierenden Stoffes (Tracer) gemessen wird. Aus dem gewonnenen zwei-dimensionalen Strahlprofil wird eine Korrektur errechnet, die auf Einzelbilder angewendet signalintensive Bereiche unverändert beibehält, das Signal in schwächeren Bereichen aber auf einen Wert anhebt, der einer gleichmäßigen Anregung entspräche.

Da die hier zu beobachtende Streifenbildung durch die Brechung an Dichtegradienten in der Nähe der Flammenfront herrührt, ist sie starken Schwankungen unterworfen und kann nicht in der beschriebenen Weise korrigiert werden. Die stetigen Fluktuationen der Flammenfront lassen eine Korrektur auf Einzelbildbasis nicht zu. Betrachtet man Mittelwertbilder aus konventionell korrigierten Bildserien (vgl. linke Seite der Abb. V.13 weiter unten), so fällt auf, dass die Intensitätsminima und -maxima nicht gleichverteilt vorkommen, wodurch sie bei einer Mittelwertberechnung „herausgemittelt“ würden. Vielmehr zeigt sich, dass es teilweise zu einer Verstärkung der Intensitätsinhomogenitäten im Profil kommen kann. Vor allem bei der späteren Flammenfrontbestimmung aus den Einzelbild-OH-Verteilungen hatte dies einen entscheidenden Einfluss auf die Resultate, da Einbrüche im Signal bei der Bildverarbeitung zu Verlust von Information und dadurch zu Unterbrechungen der Linie der Flammenfront führten. Da das Strahlprofil des Lasers selbst durch den genannten Effekt der Strahlablenkung an Bedeutung verliert, wurde daher auf die sonst übliche Profilkorrektur verzichtet und im vorliegenden Fall ein Verfahren angewendet, welches sich unter anderem die Information aus den Messserien selbst zu Nutze macht. Bei der Bearbeitung der Rohdaten wurde die Korrektur erst in einem zweiten Schritt angewendet. Die Bilder wurden in einem ersten Durchlauf anhand des zuvor beschriebenen Rastermaßstabes (Abb. V.10) korrigiert und entzerrt, anschließend mit dem gewichteten Hintergrund (Abb. V.11) korrigiert und mit einem Glättungsfilter behandelt. Im Anschluss daran wurde von jeder Messserie ein Mittelwertbild erzeugt. Aus einem ausgewählten Bereich des Mittelwertbildes, der einer homogenen Region im Messobjekt entspricht (absolute Voraussetzung für dieses Verfahren), wurde nun ein normiertes Intensitätsprofil erstellt, welches dann in einem zweiten Durchlauf zusätzlich auf die Einzelbilder als Korrektur angewendet wurde. Der Qualitätsgewinn, der damit erzielt werden konnte, ist in Abb. V.13 deutlich sichtbar.

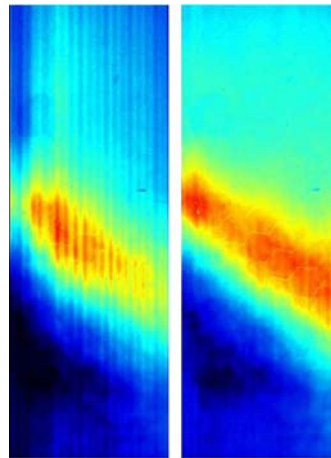


Abb. V.13: Vergleich der Ergebnisse nach konventionellem Auswerteverfahren (links) und nach Anwendung der abgewandelten Streifenkorrektur (rechts). Die Bilder geben jeweils nur die erste Messposition nach konventioneller und abgewandelter Profilkorrektur wieder. Der Übergang zu der (hier nicht dargestellten) zweiten Position, welche sich jeweils rechts anschließt, zeigt die deutliche Verbesserung.

Die Betrachtung des Phänomens legt die Vermutung nahe, dass eine nachträgliche Korrektur des Intensitätsprofils lediglich für die Mittelwertbilder möglicherweise ausreichend wäre. Da die Bestimmung der Flammenfronten jedoch aus den Einzelbildern erfolgte, zeigte sich, dass unkorrigierte Einzelbilder keine brauchbaren Resultate lieferten. Auch wenn es sich bei dem später erzeugten und eingesetzten Profil um einen Mittelwert vieler Intensitätsprofile handelte, so lag dieses für auch für die Korrektur der Einzelbilder einer einzelnen Serie näher an der „Realität“ als ein zu einem beliebigen Zeitpunkt unter völlig anderen Bedingungen erzeugtes Intensitätsprofil. Betrachtet man das linke Bild in Abb. V.13, so könnte man zu dem Schluss kommen, der komplette Bereich der Reaktionszone der Flamme sei in diesem Bereich abgebildet. Nach der abgewandelten Profilkorrektur zeigt sich jedoch ein vollkommen anderes Bild: Die Reaktionszone der Flamme reicht offensichtlich über den rechten Bildrand hinaus. Dass dem auch tatsächlich so ist, beweisen die Ergebnisse in Kapitel V.4.1. Hier ist die Überlagerung beider Messpositionen zu sehen, in deren Überlappungsbereich ein homogener Übergang der Reaktionszone festzustellen ist. Intensitätssprünge im Überlappungsbereich außerhalb der Reaktionszone stammen von veränderten Streulichtverhältnissen durch die unterschiedliche Positionierung des Laserstrahls und beruhen nicht auf Effekten durch die Profilkorrektur.

3.4 Bestimmung der Flammenfront durch Gradientenanalyse

Die so korrigierten Rohdaten wurden schließlich weiter bearbeitet, um die Flammenfront in jedem Einzelbild einer Messung zu detektieren und letztendlich eine Wahrscheinlichkeit für den Aufenthalt der Flammenfront an einer bestimmten Position zu bestimmen. Dazu wurde eine Kombination verschiedener Glättungsfilter auf die Bilder angewendet und Signal unterhalb eines selektiv bestimmten Schwellwertes entfernt. Dadurch wurde ein Großteil des konstanten Hintergrundsignals, sowie Signal niedriger Intensität hinter der Flammenfront weitgehend reduziert. Die Bilder wurden zuerst durch eine kombinierte Median/Gauß-Filterung geglättet, um rauschbedingte Gradienten zu eliminieren bzw. abzuschwächen. Anschließend wurde ein individueller Intensitätswert (Offset) subtrahiert, um schwache Signale hinter der Flammenfront zu entfernen. Nach dieser Vorbereitung wurde ein spezieller optimierter Sobelfilter angewendet, der dadurch charakterisiert ist, dass gleichzeitig senkrecht zum Gradientenfilter ein Glättungsfilter angewendet wird (s. auch Kap. IV.3.3, [96, 97]).

Nach Anwendung dieses Filters ist es schließlich notwendig, den steilsten Gradienten der Flammenfront von flachen Gradienten aus Bereichen hinter der Flammenfront zu trennen. Dies geschieht in einfacher Weise wiederum durch Subtraktion eines individuell bestimmten Intensitätswertes (Offset). Die wichtigsten Verarbeitungsschritte sind in Abb. V.14 nochmals anhand eines einzelnen Bildes dargestellt.

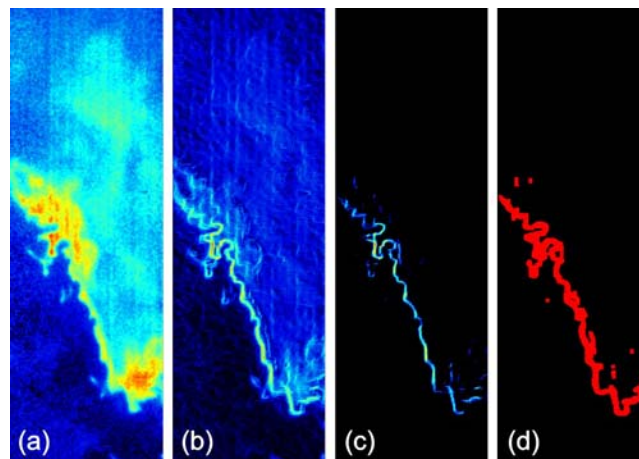


Abb. V.14: Zusammenfassung der wichtigsten Verarbeitungsschritte zur Bestimmung der Flammenfront: (a) korrigierte instantane OH-LIF-Verteilung, (b) Ergebnis nach Anwendung des optimierten Sobel-Filters, (c) Diskriminierung unerwünschter Gradienten hinter der Flammenfront, (d) Endergebnis nach Dilatation und Reduktion der Dynamik auf 1 Bit (schwarz: 0, rot: 1).

Zuletzt wurde noch in Hinblick auf das angestrebte Ziel der Messungen, eine statistische Aussage über die Lokalisierung der Flammenfront zu erhalten, die dargestellte Information

nachbearbeitet. Das sehr schmale Band, als welches die Flammenfront detektiert wird, reicht nicht aus, um bei einer Mittelung über etwa 400 Bilder eine gleichmäßige Wahrscheinlichkeitsverteilung darzustellen. Daher wurde die Flammenfront jeweils mittels eines Dilatationsfilters leicht aufgeweitet, wodurch auch etwaige Fehlstellen geschlossen wurden. Typischerweise erhält man nach Schritt (c) in Abb. V.14 die Lage der Flammenfront in Form eines Bandes mit einer Breite von ca. 0,7–1 mm. Nach Anwendung des Dilatationsfilters weist dieses dann eine Breite von ca. 1,8–2 mm auf. Zuletzt wurden die erhaltenen Bilder binarisiert (Intensitätswerte: 0 und 1). Die so erhaltenen 2-dimensionalen Ortsinformationen über den Aufenthalt der Flammenfront in jeder einzelnen Messaufnahme wurden dann zu einem Mittelwertbild verarbeitet, welches schließlich Aufschluss über die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Flammenfront an einem bestimmten Ort gibt.

4 Ergebnisse

Die folgenden beiden Kapitel dokumentieren die Ergebnisse, die bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen des Hybridbrenners beobachtet wurden. Die untersuchten Betriebsmodi umfassen dabei ein relativ breites Spektrum. Zum einen wurde der Brenner im nicht-vorgemischten Diffusionsmodus betrieben, der im Kraftwerksbetrieb hauptsächlich während des An- und Abfahrens der Turbine im Einsatz ist, da er sich durch eine hohe Stabilität der Flamme auszeichnet. Zum anderen wurde die Flamme im vorgemischten Betrieb untersucht, welcher im eigentlichen Lastbetrieb der Turbine bevorzugt wird, da dieser, aufgrund niedrigerer Verbrennungstemperaturen, einen geringeren Schadstoffausstoß (NO_x) aufweist. Da die Flamme in diesem Betriebsmodus jedoch anfällig für Störungen ist, und bisweilen die Gefahr besteht, dass die Flamme verlöscht, ist der zusätzliche Betrieb einer Pilotflamme zur Stabilisierung bei dem beschriebenen Brennerkonzept vorgesehen. Dabei wird ein Teil des Brennstoffs über Pilotgasdüsen im Axialgitter zugeführt, der zu einem lokalen „fetten“ bis stöchiometrischen Gemisch führt, das die Flamme an der Brennerdüse stabilisiert. Auch diese Flamme mit zusätzlicher Pilotierung wurde untersucht.

Üblicherweise hat das verwendete Luftgemisch ein Äquivalenzverhältnis (Erdgas/Luft) von $\Phi_0 = 0,5$. Damit liegt also ein deutlicher Luftüberschuss vor, die Flamme ist mager. Entfernt man sich von diesem Mischungsverhältnis in Richtung eines stöchiometrischen Gemisches ($\Phi > 0,7$), so treten immer mehr Instabilitäten der Flamme auf. Diese Instabilitäten rühren von

einer akustischen Resonanz her, die sich zwischen Plenum und Brennkammer einstellt und mit steigendem Äquivalenzverhältnis zunehmend stärkere Auswirkungen auf die Flammenstabilität zeigt. Während man unter Standardbetriebsbedingungen eine stationäre, also räumlich nicht fluktuierende Flamme beobachtet, wird diese unter den zuletzt beschriebenen Bedingungen instationär. Es kommt zu einem Pulsieren der Flamme. Der Übergang in den instationären Zustand ist dabei nahezu fließend. Mit Einsetzen der Instabilitäten nehmen die Auswirkungen auf die Flamme und die Intensität (Amplitude) der akustischen Schwingungen stetig zu. In den folgenden Abschnitten sind die Ergebnisse der Messungen beschrieben. Sie sind untergliedert in stationäre und instationäre Betriebsmodi.

Anmerkung: *Da es sich bei dem untersuchten Brenner um eine industrielle Anlage handelt, die der Geheimhaltung unterliegt, sind nur wenige Details, vor allem bezüglich genauer Betriebsbedingungen, für die Öffentlichkeit zugänglich. Die Betriebszustände sind daher so weit wie möglich spezifiziert, um dem Interessierten einen groben Überblick zu verschaffen. Auf Detailangaben muss jedoch leider verzichtet werden.*

4.1 Stationärer Betrieb

Im Folgenden sind die Resultate aus den Messungen bei stationären Betriebsbedingungen zusammengestellt. Sie umfassen die Betriebsmodi:

- Nicht-vorgemischter (Diffusions-) Betrieb
- vorgemischter Betrieb ohne Pilotierung
- und vorgemischter Betrieb mit Pilotierung (7%).

Das Äquivalenzverhältnis bei diesen Standardbedingungen lag jeweils bei $\Phi_0 = 0,5$.

Bei den nachfolgenden Ergebnissen ist zu beachten, dass die dargestellten Bilder aus zwei überlappenden Messpositionen zusammengesetzt sind (vgl. Abb. V.15). Gemessen wurde in einem Bereich zwischen 45 und 113 mm hinter dem Brenneraustritt. Die Höhe des Messbereiches ist 108 mm und bildet die untere Hälfte der Flamme ab, wobei der obere Bildrand der Brennerachse entspricht.

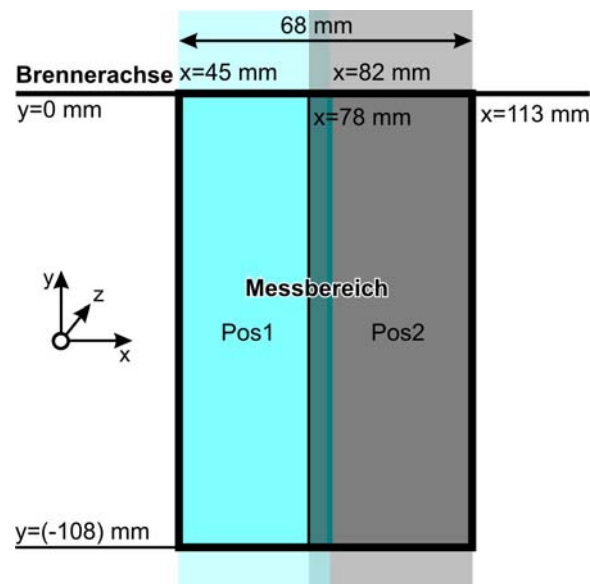


Abb. V.15: Die beiden Messpositionen aus welchen die gemittelten Messergebnisse erhalten wurden. Dargestellt ist der gesamte Aufnahmebereich der Kamera. Der eigentliche Messbereich (Pos1, Pos2) konnte verändert werden, ohne die Kamera bewegen zu müssen. Es wurde in 2 Serien gemessen, da eine Ausleuchtung des gesamten Bereiches auf einmal nicht möglich war. Die beiden Laserlichtblätter von ca. 37 bzw. 35 mm überlappen im mittleren Bereich und ergeben zusammen ein Messfeld von insgesamt $68 \times 108 \text{ mm}^2$ welches 45 mm hinter dem Brenneraustritt beginnt und auf der zentralen Achse des Brenners liegt ($z = 0$).

Teilweise sind durch unterschiedliche Beiträge der Hintergrundstrahlung deutliche Unterschiede des Hintergrundes zu beobachten. Dies rührt daher, dass, wie oben beschrieben, für jedes Bild individuell korrigiert wurde und somit der Hintergrund auch in unterschiedlichem Maße in den jeweiligen Serien hervortritt. Dieser Effekt ist hauptsächlich in den gemittelten OH-Verteilungen und den Standardabweichungen (rel. RMS-Wert-Bilder) zu erkennen. Eine weitergehende Korrektur dieser Artefakte war nicht möglich, ohne massiv in die gemessenen Daten einzugreifen und manuelle Korrekturen durchzuführen. Daher wurde auf eine derartige Korrektur verzichtet und stattdessen bevorzugt, die Problemzonen in den jeweiligen Bildern kenntlich zu machen. Auch dem weniger erfahrenen Betrachter sollte so möglich sein, zu erkennen, wie die gemittelten Flammenstrukturen verlaufen.

4.1.1 Nicht-vorgemischter Betrieb

Der nicht-vorgemischte Betrieb oder Diffusionsbetrieb zeichnet sich überwiegend durch seine Stabilität aus und findet daher seine hauptsächliche Verwendung während des An- und Abfahrens der Turbine. Er soll hier daher als Erster beschrieben werden. Im nicht-vorgemischten Betrieb strömt, wie schon in Kapitel V.2 beschrieben, das Erdgas aus den

Gasdüsen des Axialgitters nahe der Brennerachse, während die stark verdrallte Luft hauptsächlich aus dem Diagonalgitter zuströmt.

Die Ergebnisse der Messungen in dieser Flamme sind in den folgenden Abbildungen dargestellt. In Abb. V.16 sind einige instantane Einzelaufnahmen der laserinduzierten Fluoreszenz von OH an der ersten Messposition (vgl. Abb. V.15 auf S.107) und die jeweils daraus bestimmten Flammenfronten zusammengestellt.

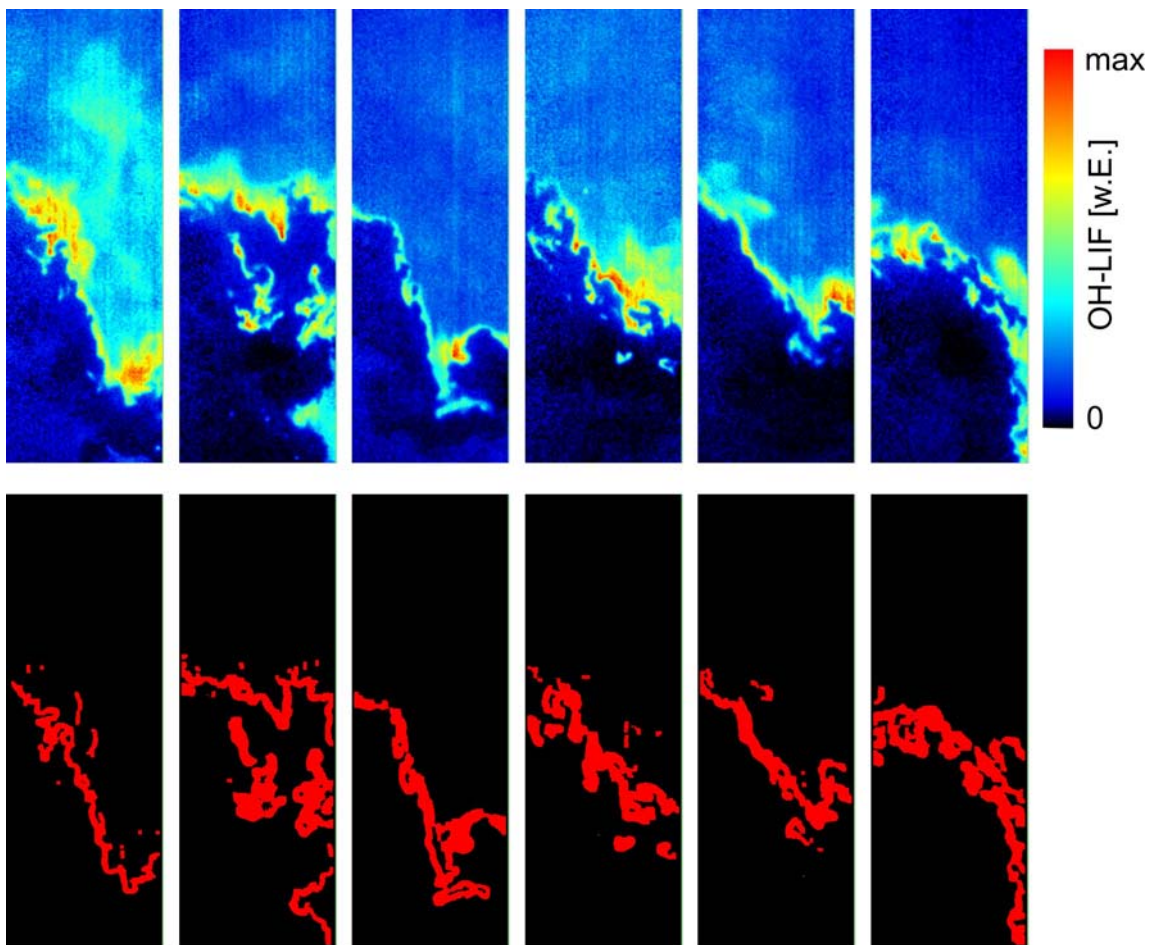


Abb. V.16: OH-LIF-Einzelmessungen in der nicht-vorgemischten Flamme (oben) und die daraus bestimmten Flammenfronten (unten). Die Information in den binären Abbildungen der Flammenfront ist auf das Vorhandensein (rot) bzw. die Abwesenheit (schwarz) der Flammenfront beschränkt. Durch Mittelwertbildung über die gesamte Messreihe wird die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Flammenfront an einem bestimmten Ort in der Brennkammer für den untersuchten Betriebsmodus bestimmt.

Anhand der Einzelmessungen ist klar zu erkennen, dass die Hauptreaktionszone sich innerhalb eines definierten Bereiches bewegt. Dieser Bereich entspricht dem Ort, an dem die Durchmischung von zentral über das Axialgitter einströmendem Brennstoff und der umgebenden Verbrennungsluft aus dem Diagonalgitter stattfindet und ein zündfähiges Gemisch

gebildet wird. Die detektierten Flammenfronten weisen feine zusammenhängende Strukturen auf. Eine Bildung von brennenden Gaspaketen kann nicht beobachtet werden.

In Abb. V.17 sind die zeitlich über die gesamte Messserie gemittelten Ergebnisse wiedergegeben. Im oberen Teil der Abbildung ist der Messbereich, inklusive der relativen Position zum Brennerkopf maßstäblich dargestellt. Die unterbrochene Linie gibt die grobe Lage der Scherschicht zwischen Hauptströmung und innerer Rezirkulationszone wieder. In der Skizze des Brennerkopfes ist zur Veranschaulichung die Position der Düsen, über die der Brennstoff zugeführt wird, nochmals hervorgehoben.

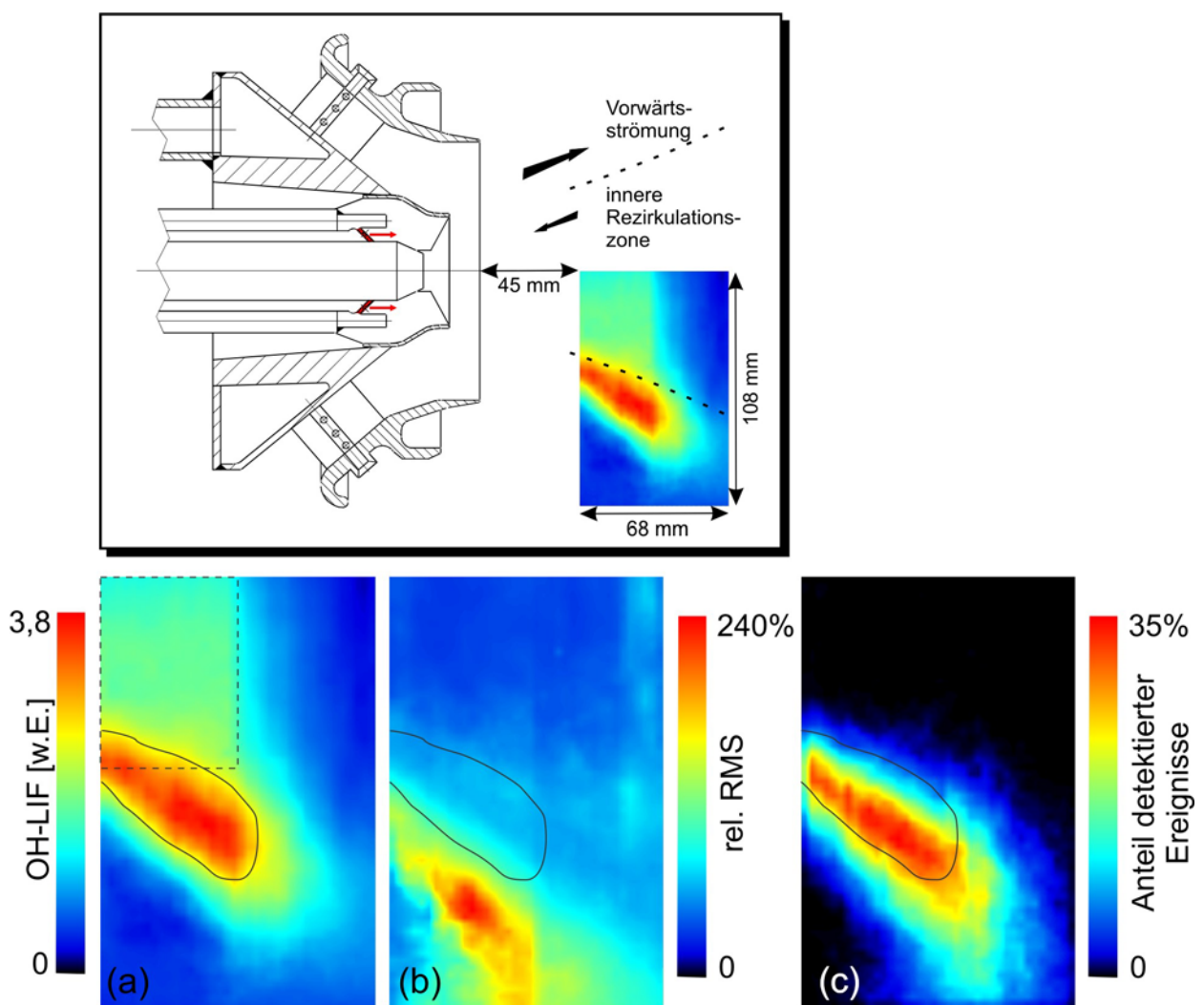


Abb. V.17: Diffusionsflamme. Oben: Maßstäbliche Darstellung des beobachteten Bereiches relativ zur Brennerposition und Lage der Scherschicht zwischen Haupt- und innerer Rückströmung (---). Unten: (a) OH-LIF-Signal gemittelt; der von Streustrahlung beeinflusste Bereich ist gekennzeichnet (---). (b) Relativer RMS-Wert. Die stärksten Fluktuationen finden sich im Außenbereich der Flamme. (c) Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Flammenfront. Zur Orientierung ist jeweils eine Isolinie des OH-LIF-Signales (—) dargestellt.

In den Bildern darunter ist zum Vergleich die Darstellung der gemittelten OH-Speziesverteilung (a) mit dem ebenso ermittelten RMS-Wert (b) dem Ergebnis der Flammenfrontanalyse (c) gegenübergestellt. Sehr deutlich ist in Abb. V.17(a) der Bereich der Hauptverbrennungszone zu erkennen, der sich zwischen Axial- und Diagonalaustritt befindet. Die Verbrennung findet in diesem Bereich statt, da sich hier in der Mischungszone von zentral einströmendem Erdgas/Luftgemisch und dem äußeren Hauptstrom verdrallter Verbrennungsluft durch turbulente Vermischung ein zündfähiges Gemisch bildet. Die höchste LIF-Intensität und somit höchste OH-Konzentration findet sich in einem Bereich, der etwa in einem Winkel von 35° zur Brennerachse steht und einen Schnitt durch den unteren Teil der kegelförmigen Verbrennungszone darstellt.

In der linken oberen Hälfte des Bildes ist ein deutlich höherer Hintergrund, markiert durch ein Rechteck, zu beobachten als in der rechten Bildhälfte. Der höhere Hintergrund rührt offensichtlich von einer zunehmenden Reflexion des gegenüberliegenden Fensters im Vergleich zur Referenz (vgl. Abb. V.11) her, die bei der Korrektur nicht vollständig eliminiert werden konnte, da sonst die Korrektur der Rahmenreflexionen zu stark gewichtet worden wäre.

In der Abb. V.17(b) ist die Standardabweichung, der relative RMS-Wert, angegeben, der sich aus den relativen Schwankungen der Daten für den Diffusionsbetrieb ergibt. Die Abbildung zeigt, dass die Stärke der Schwankungen in Bezug auf die mittlere gemessene OH-LIF-Intensität sich auf die Außenseite des Flammenkegels beschränkt, während im Inneren des Kegels kaum Variationen zu verzeichnen sind. Dies deutet auf eine Stabilisierung der Flamme von innen her hin und ist ein Hinweis auf eine innere Rezirkulationszone, welche diese Aufgabe übernimmt.

Hervorgerufen wird diese Rezirkulation durch die hohe Austrittsgeschwindigkeit und eine starke radiale Komponente der Strömung. Die radiale Drallbewegung induziert einen Unterdruck im Inneren des Flammenkegels, der die heißen Abgase zum Brennermund zurückführt und so zu einer inneren Zirkulation und Vermischung von heißen Abgasen und zündfähigem Gemisch führt.

Zur Verdeutlichung der gegenseitigen Orientierung ist eine Isofläche des OH-LIF-Signals in den Abbildungen eingezeichnet.

Die in den Teilbildern (a) und (b) dargestellten Intensitäten entsprechen relativen LIF-Intensitäten. Das Ziel der Untersuchungen war nicht, quantifizierte OH-Verteilungen zu messen. Es ist zu beachten, dass der Bereich der Falschfarbentabelle für eine optimale Anzeige der jeweiligen Messserie angepasst wurde und die dargestellten Intensitäten der OH-Mittelwert Bilder der verschiedenen Serien nicht miteinander verglichen werden können. Für einen

qualitativen Vergleich der gemessenen OH-LIF-Intensitäten sind die jeweiligen Ergebnisse noch einmal separat am Ende dieses Kapitels gegenübergestellt.

Die Analyse der Flammenfront für den vorliegenden Betriebszustand ergab ein Resultat, das in Abb. V.17(c) dargestellt ist. Die Intensitätsskala des Bildes gibt den prozentualen Wert für die Häufigkeit eines Auftretens der Flammenfront an einem bestimmten Punkt an, d.h. wie oft die Flammenfront relativ an diesem Punkt detektiert wurde. Die maximal bestimmte Häufigkeit lag bei dieser Messung bei ca. 35%. Die Struktur und Orientierung des Großteils fällt weitestgehend mit dem in Abb. V.17(a) dargestellten Resultat zusammen. Überlagert man jedoch die Resultate aus beiden Auswerteverfahren, so fällt deutlich auf, dass die Flammenfronten etwas mehr an der Außenseite des Flammenkegels orientiert sind. Auch dies lässt sich erklären: Die Flammenfront liegt bei diesem Betriebsmodus außerhalb, d.h. im Bild unterhalb, der reaktiven Zone. Die mittlere Position der Flammenfront ist daher gegenüber der mittleren Position der OH-Signalintensität „nach unten“ verschoben. Im Detail erklärt sich das wie folgt: OH spielt eine maßgebliche Rolle bei den Verbrennungsprozessen, die in der Flammenfront ablaufen (vgl. Abb. V.4). Bei den dort herrschenden hohen Temperaturen wird OH rasch gebildet und liegt, aufgrund seiner wichtigen Funktion als Kettenüberträger und Produkt von Kettenverzweigungsreaktionen, auch in höheren Konzentrationen vor. Die Bedingungen, unter denen OH vorkommt, sind jedoch nur in der Flammenfront und innerhalb der Flamme gegeben, wo rezirkulierende heiße Abgase zum Brennerkopf zurückgeführt werden. Diese heizen das einströmende Frischgas weiter auf, und die noch vorhandenen OH-Radikale unterstützen die Zündung heißer Frischgaspakete in der Verbrennungszone. Diese OH-Vorkommen in der Reaktionszone und im Rezirkulationsbereich der Flamme leisten jedoch keinen Beitrag bei der Analyse der Flammenfront, da sie außerhalb dieser liegen. Im Gegensatz dazu gibt die (gemittelte) OH-LIF-Verteilung das Gesamt-OH-Vorkommen im Messbereich wieder.

4.1.2 Vorgemischter Betrieb ohne Pilotierung

In weiteren Messungen wurden zwei Betriebszustände des Brenners bei vorgemischtem Betrieb untersucht. Nachfolgend ist die reine vorgemischte Flamme *ohne Pilotierung* beschrieben. Im vorgemischten Betrieb wird der Hauptbrennstoff über die Brennstoffdüsen in den Schaufeln des Diagonalgitters zugeführt. Welche Auswirkungen dies auf die Struktur der Flamme hat, sieht man in den folgenden Abbildungen. In Abb. V.18 sind sechs Einzelmessungen der OH-LIF-Intensität mit den daraus bestimmten Flammenfronten abgebildet.

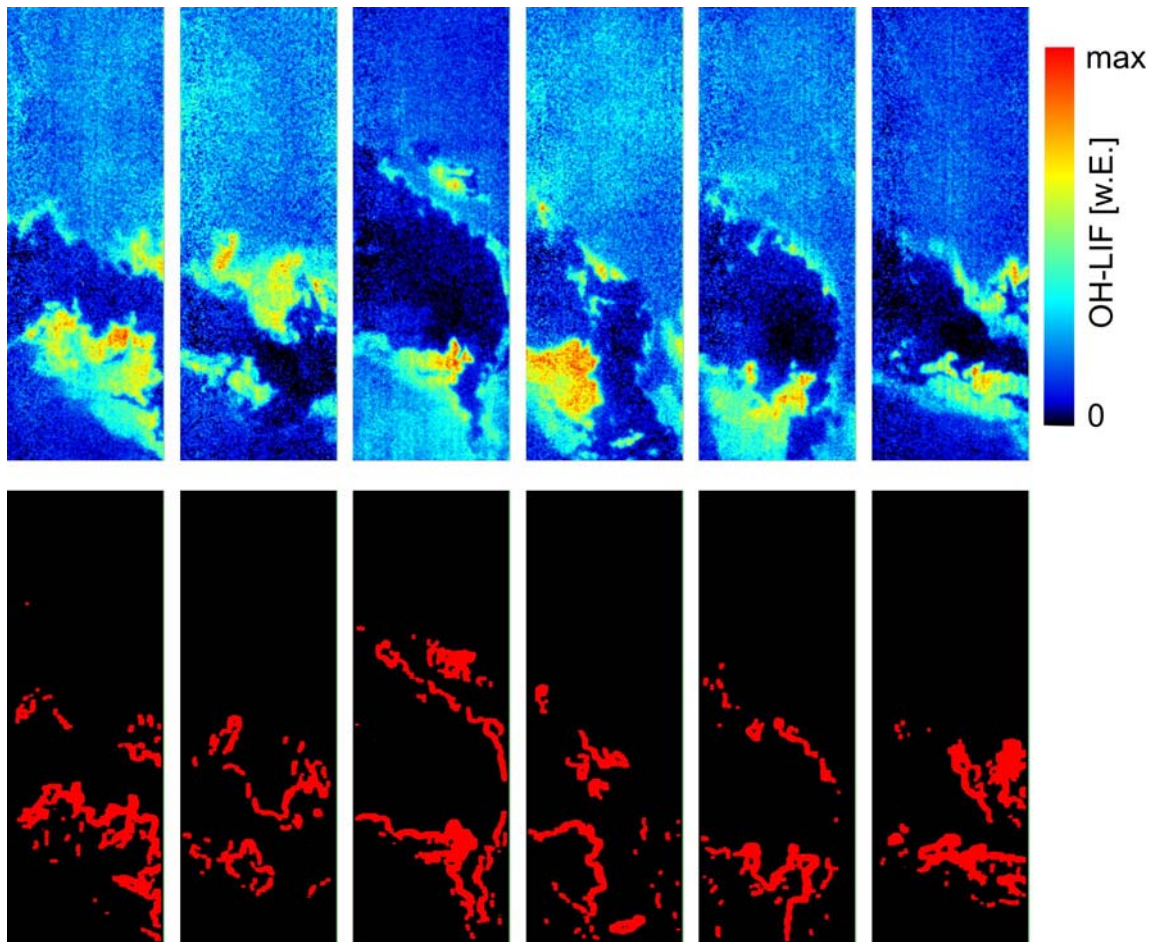


Abb. V.18: OH-LIF-Einzelmessungen in der vorgemischten Flamme ohne Pilotierung (oben) und daraus bestimmte Flammenfronten (unten). Die binären Bilder zeigen das Vorhandensein (rot) bzw. die Abwesenheit (schwarz) der Flammenfront. Durch Mittelwertbildung über die gesamte Messreihe wird daraus eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Flammenfront an einem bestimmten Ort in der Brennkammer für den untersuchten Betriebsmodus gewonnen.

Die instantanen OH-LIF-Aufnahmen zeigen, dass sich die Reaktionszone zu beiden Seiten des einströmenden Brennstoffgemisches ausbildet. Dies ist möglich, da bereits zündfähiges Gemisch in die Brennkammer eintritt, welches im Kontaktbereich zu den heißen Abgasen der Rezirkulationszone bzw. der außen liegenden Reaktionszone zündet und abbrennt. Da vorgemischtes Gas eintritt, findet man nicht zwangsweise eine klar strukturierte Flammenfront, die sich entlang einem sehr schmalen Reaktionsbereich erstreckt. Vielmehr findet man auch größere reagierende Gaspakete, während an anderen Stellen des Kontaktbereiches kaum OH zu beobachten ist. Dies hat auch Auswirkungen auf die Detektion der Flammenfront. In diesem Betriebsmodus ist es durch die teilweise stark gefaltete Struktur der Flammenfront schwierig die Flammenfronten gezielt zu detektieren, da die reagierenden Pakete sowohl zur Frischgasseite, als auch zur abgewandten Seite, steile Gradienten aufweisen. Nur durch eine fein abgestimmte Einstellung der Schwellwerte bei der Verarbeitung der LIF-Bilder zu Flammenfrontdar-

stellungen kann ein zufrieden stellendes Ergebnis erzielt werden. Fehlinformationen, wie kleine Überreste auf der dem Frischgas abgewandten Seite, spielen keine bedeutende Rolle, da sie im statistischen Mittel kaum Gewichtung finden. Eine bisweilen unterbrochene Flammenfront geht auf teilweise sehr flache Intensitätsgradienten zurück, was jedoch keine Fehlinformation darstellt, wie sich später beim Vergleich mit Simulationsergebnissen zeigen wird (Kap. V.4.1.5).

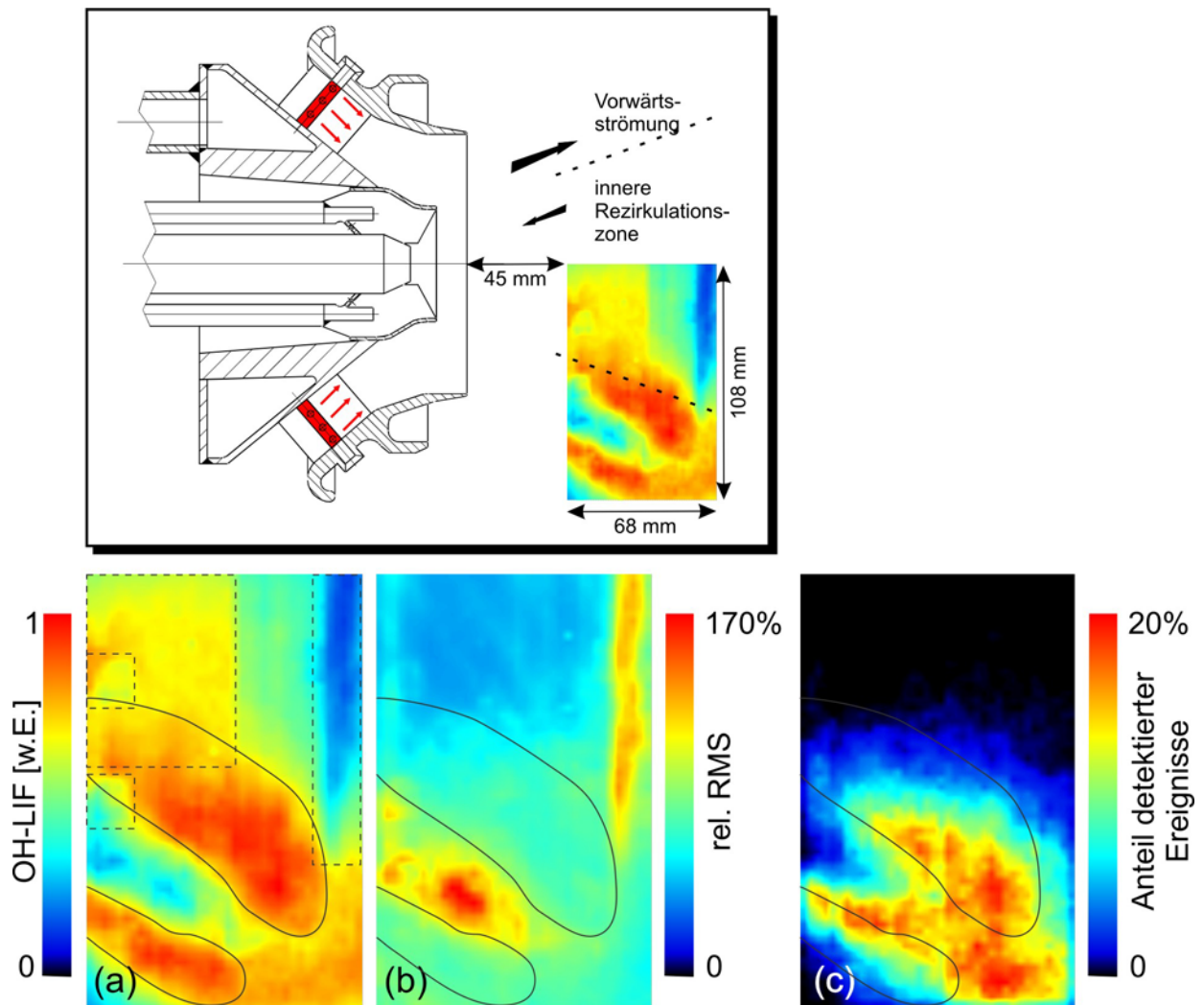


Abb. V.19: Vormischflamme ohne Pilotierung. Oben: Maßstäbliche Darstellung des beobachteten Bereiches relativ zur Brennerposition und relative Lage der Scherschicht zwischen Hauptströmung und innerer Rezirkulationszone (---). Unten: (a) OH-LIF-Signal (gemittelt); Bereich mit Streustrahlung ist gekennzeichnet (---). (b) Relativer RMS-Wert. Die Schwankungen beschränken sich überwiegend auf den Frischgasbereich zwischen den Reaktionszonen. Die Flamme ist durch die innere Rezirkulationszone stabilisiert. (c) Flammenfrontanalyse der unpilotierten Flamme. Die beiden Reaktionszonen finden sich an den Rändern der Frischgaskegels. Die innere Reaktionszone ist vom Brennerkopf abgehoben. Zum Vergleich ist jeweils eine Isolinie des OH-LIF-Signales eingezeichnet.

In Abb. V.19 ist im oberen Teilbild der gesamte beobachtete Bereich maßstäblich zum Brennerkopf dargestellt. Der Messbereich ist auch hier 45 mm hinter dem Brenneraustritt und

bildet eine Fläche von 68×108 mm ab. Die grobe Lage der Scherschicht zwischen Haupt- und Rückströmung ist ebenfalls dargestellt. Die beiden unteren Abbildungen (Abb. V.19(a/b)) zur Linken stellen die OH-LIF-Intensitätsverteilung und deren Standardabweichung gegenüber. Teilbild (c) zur Rechten gibt das Ergebnis der Flammenfrontanalyse wieder.

Prinzipiell fällt auf, dass sich die Reaktionszone beim Vormisch-Betrieb in einen inneren und einen äußeren Flammenkegel aufteilt. Zwischen beiden Kegeln findet sich ein Bereich, in dem unverbranntes Frischgas/Luft-Gemisch vorliegt, welches über das Diagonalgitter einströmt. Hier ist kein OH-Signal zu detektieren. Nach außen hin schließt sich eine weitere Reaktionszone an. Die innere Reaktionszone dominiert deutlich, da es hier in der Scherzone zwischen der Hauptströmung aus dem Diagonalgitter und der inneren Rezirkulationszone zu einer Durchmischung von zündfähigem Gemisch und den sehr heißen Abgasen aus der inneren Rückströmung kommt. Dadurch wird ein schnelles Aufheizen des Frischgases sowie seine schnelle Zündung unterstützt.

Bei Betrachtung der relativen Standardabweichung (Abb. V.19(b)) für diesen Fall fällt auch wieder auf, dass sich die stärksten Fluktuationen auf den Zwischenbereich zwischen den beiden Reaktionszonen, also den Frischgasbereich, beschränken. Der äußere Flammenkegel scheint hier weitgehend unbeeinflusst und innerhalb, zur Brennerachse hin, wird die Flamme auch wieder durch die innere Rezirkulationszone stabilisiert.

Es sei auch hier darauf hingewiesen, dass Störeinflüsse durch Streuung in einigen Bereichen der oben gezeigten Bilder nicht zu korrigierendes Falschsignal hervorriefen. Dazu gehört u.a. wieder der bereits schon zuvor beobachtete Bereich in der linken oberen Ecke, zu dem zwei schwache Signaleinbrüche im selben Bereich (Schweißstellen des rückseitigen Fensterrahmens) hinzukommen. Auf der rechten Seite ist ein breiterer Streifen eines Signaleinbruches zu erkennen. Starke Signal-Fluktuationen in diesem Bereich (RMS-Bild) weisen darauf hin, dass an dieser Stelle stark schwankende Streuung zu diesem Effekt geführt hat. Da dieser Bereich aber weitgehend außerhalb des interessanten Messbereiches liegt, spielt dies keine bedeutende Rolle.

In der rechten Abb. V.19(c) ist das Ergebnis der Flammenfrontuntersuchung dargestellt. Die beobachtete maximale Häufigkeit des Auftretens der Flammenfront (ca. 20%) in einem bestimmten Bereich der Flamme konzentriert sich auch hier wie erwartet deutlich zur Frischgasseite der beiden Reaktionszonen hin. Bei genauerer Betrachtung fällt jedoch ein maßgeblicher Punkt in Bezug auf die innere Reaktionszone auf. Die gefundene Häufigkeit eines „Ereignisses“ ist hier zum Brenner hin relativ gering. Die Daten, vor allem im Vergleich zu den

übrigen Messungen, sprechen dafür, dass in diesem Fall die Flamme der inneren Reaktionszone deutlich abgehoben ist.

4.1.3 Vorgemischter Betrieb mit Pilotierung

Beim dritten Betriebszustand unter stationären Bedingungen wurden ausgehend vom reinen vorgemischten Betrieb zusätzlich 7% des Brennstoffes über die Pilotgasdüsen zugeführt.

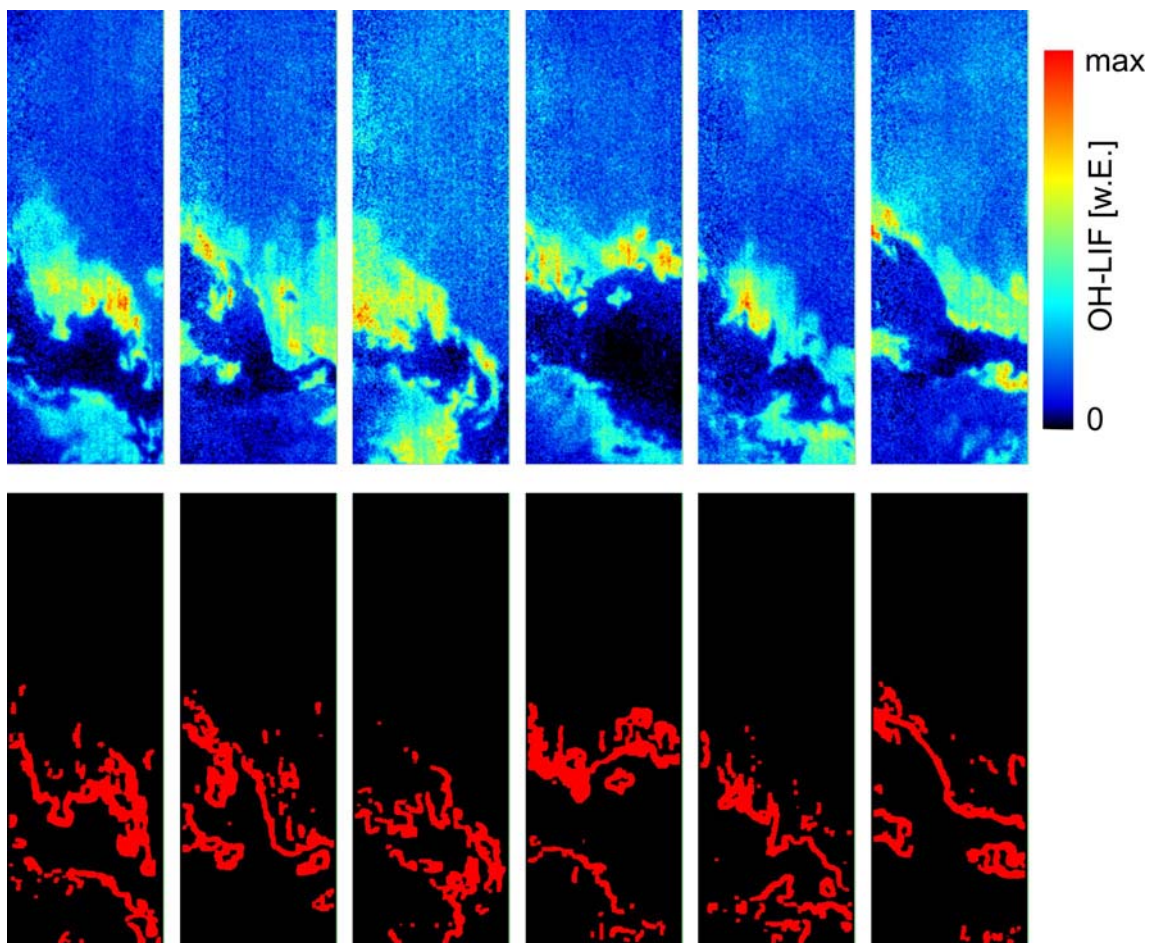


Abb. V.20: Einzelmessungen von OH-LIF in der vorgemischten Flamme mit Pilotierung (oben) und daraus bestimmte Flammenfronten (unten). Die binären Bilder zeigen das Vorhandensein (rot) bzw. die Abwesenheit (schwarz) der Flammenfront. Aus der gesamten Messreihe lässt sich durch Mittelwertbildung daraus eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Flammenfront für jeden Punkt im Messbereich gewinnen.

Bei diesem Vormischbetrieb *mit Pilotierung* ist zu beobachten, dass das wesentliche OH-Vorkommen überwiegend im inneren Flammenkegel zu finden ist. Dies spiegeln bereits die Aufnahmen in Abb. V.20 wider. Die Bilder der oberen Reihe geben instantane Messungen der OH-LIF-Intensität an Messposition 1 (s. Abb. V.1 auf S.107) wieder. Es ist deutlich zu sehen,

dass die Reaktionszone des inneren Flammenkegels sehr ausgeprägt ist und im Gegensatz zur unipilotierten Flamme nur wenige Unterbrechungen zum Brennerkopf hin aufweist. Die Auffaltung der Flammenfront ist sehr stark. Ein deutlicheres Bild ergibt sich, wenn man die Ergebnisse einer statistischen Mittelung über die gesamte Messserie betrachtet (Abb. V.21).

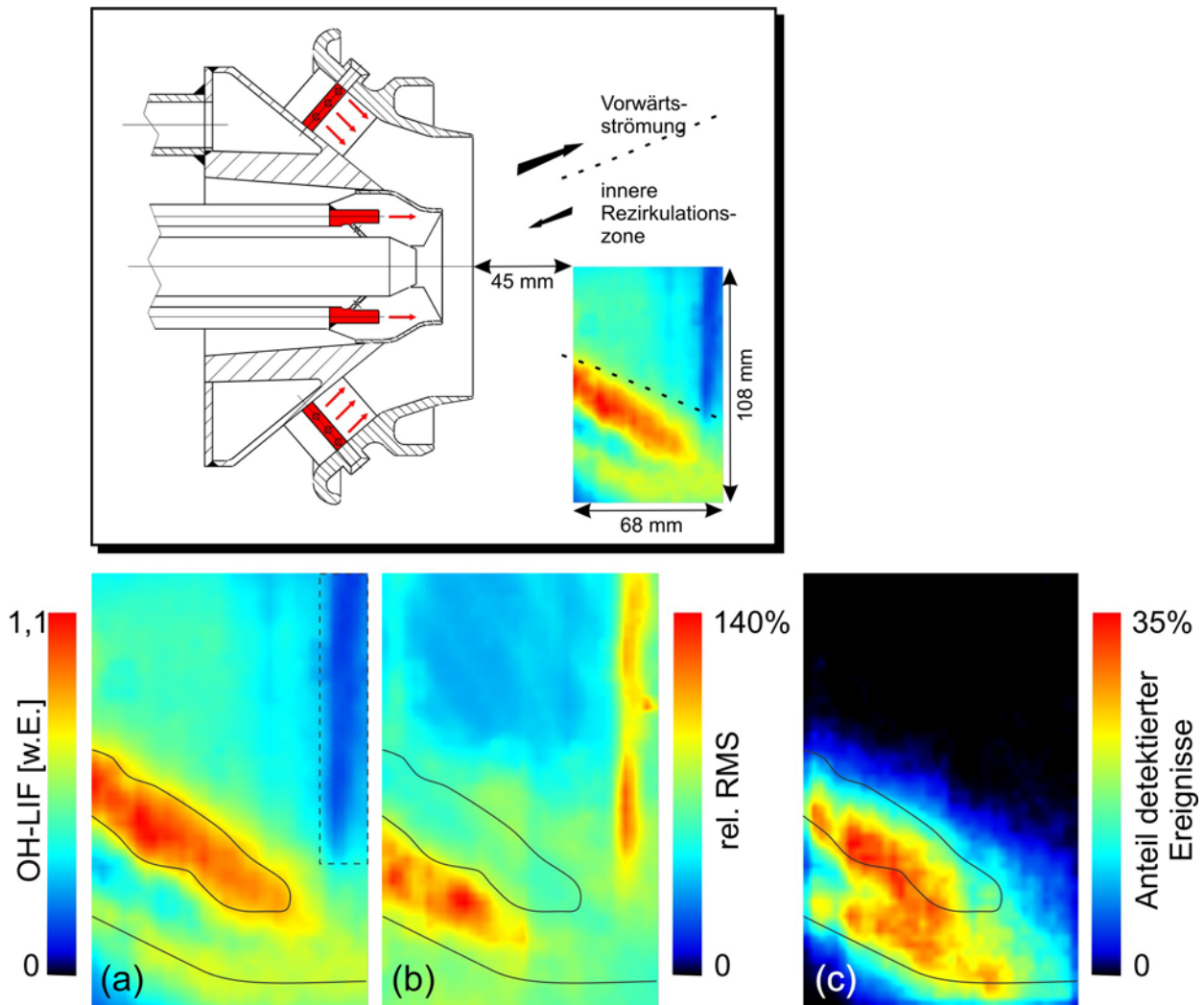


Abb. V.21: Vormischflamme mit 7% Pilotierung. Oben: Maßstäbliche Darstellung des untersuchten Bereiches relativ zum Brennerkopf und Lage der Scherschicht zwischen Hauptströmung und Rezirkulationszone (---). Unten: (a) gemitteltetes OH-LIF-Signal; Ein deutlich schärfer umrissener Reaktionsbereich ist zu erkennen. Es findet sich relativ wenig OH-LIF im äußeren Flammenkegel. Bereich mit Streustrahlung (Signaleinbruch) ist gekennzeichnet (---). (b) Relativer RMS-Wert. Schwankungen finden sich fast nur in der Region zwischen den beiden Reaktionszonen im Frischgasbereich. Die Schwankungen sind gleichmäßig in diesem Bereich verteilt. (c) Flammenfrontanalyse der pilotierten Flamme. Ein Abheben der Flamme ist innerhalb des beobachteten Bereiches nicht zu erkennen. Zur Orientierung ist jeweils eine Isolinie des OH-LIF-Signales der Flamme (—) sowie eine Orientierungslinie im äußeren Reaktionsgebiet eingezeichnet.

Das gemessene OH-Vorkommen in Abb. V.21(a) weist eine wesentlich schärfere und klarer umrissene räumliche Verteilung auf als ohne Pilot-Flamme. Der Bereich des OH-Vorkommens

ist relativ schmal und lang gestreckt. Es ist zudem die deutliche Dominanz des inneren Flammenkegels zu beobachten, welcher durch die Pilotflamme gestützt wird. Dagegen ist im äußeren Flammenkegel bedeutend weniger OH zu finden. Im Vergleich mit den vorangegangenen Betriebsarten fällt zudem auf, dass der gesamte innere Flammenkegel weiter nach außen gewandert ist. Schaut man weiter auf den Bereich des einströmenden noch nicht reagierenden Frischgases, so fällt auf, dass dieser Bereich hier ebenfalls deutlich schmaler ausgelegt ist.

Ein Blick auf das in Abb. V.21(b) dargestellte RMS-Bild zeigt ferner, dass beim direkten Vergleich mit der reinen Vormischflamme hier die Fluktuationen im Bereich des einströmenden Frischgases homogener sind als für den Fall ohne Pilotierung.

Erfreulicherweise sind in den Ergebnissen dieses Betriebspunktes nur geringe Einflüsse von Streuung zu beobachten. Lediglich der schmale Streifen am rechten Bildrand tritt hier hervor. Er befindet sich aber in einem irrelevanten Bereich und stört die Ergebnisse nicht.

Einen zusätzlichen Einblick in die etwas veränderte Flammgeometrie erlaubt die Untersuchung der Flammenfronten (Abb. V.21(c)). Sie weisen darauf hin, dass die Pilotierung einen entscheidenden Einfluss auf die Form und Stabilität der Flamme in bestimmten, vor allem brennernenahen Regionen hat. Mit dem Gesamt-OH-Vorkommen ist auch die Region der eigentlichen Reaktionszone des inneren Flammenkegels weiter nach außen gewandert. Die beiden Reaktionszonen und die Frischgaszone selbst sind viel deutlicher umrissen und schmaler als im vorherigen Fall. Es fällt auf, dass die innere Reaktionszone viel näher zum Brenner gewandert ist. Ein Abheben der Flamme innerhalb des untersuchten Bereiches ist nicht zu erkennen.

4.1.4 Vergleich der stationären Betriebszustände

Im folgenden Vergleich sind nochmals die gemittelten OH-LIF-Intensitäten der drei Betriebszustände sowie die zugehörigen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Flammenfront gegenübergestellt. Aufgrund der individuellen Behandlung jeder Serie, und auch jedes Einzelbildes der jeweiligen Serie, ist ein absoluter Vergleich der Intensitäten nicht sinnvoll. Es ist jedoch möglich im Rahmen eines qualitativen Vergleiches die Ergebnisse in eine ungefähre relative Beziehung zu setzen.

In der Abb. V.22 sind nochmals die Ergebnisse der Diffusions-, der Vormischflamme *ohne Pilotierung* und der Vormischflamme *mit Pilotierung*, jeweils von links nach rechts, gegenübergestellt. Die Teilabbildungen (a) bis (c) geben die relativen LIF-Intensitäten, die

Teilabbildungen (d) bis (f) die relativen Häufigkeiten der Flammenfront an einem Punkt wieder. Die Intensitäten sind jeweils relativ zu der maximalen Intensität der Diffusionsflamme gesetzt.

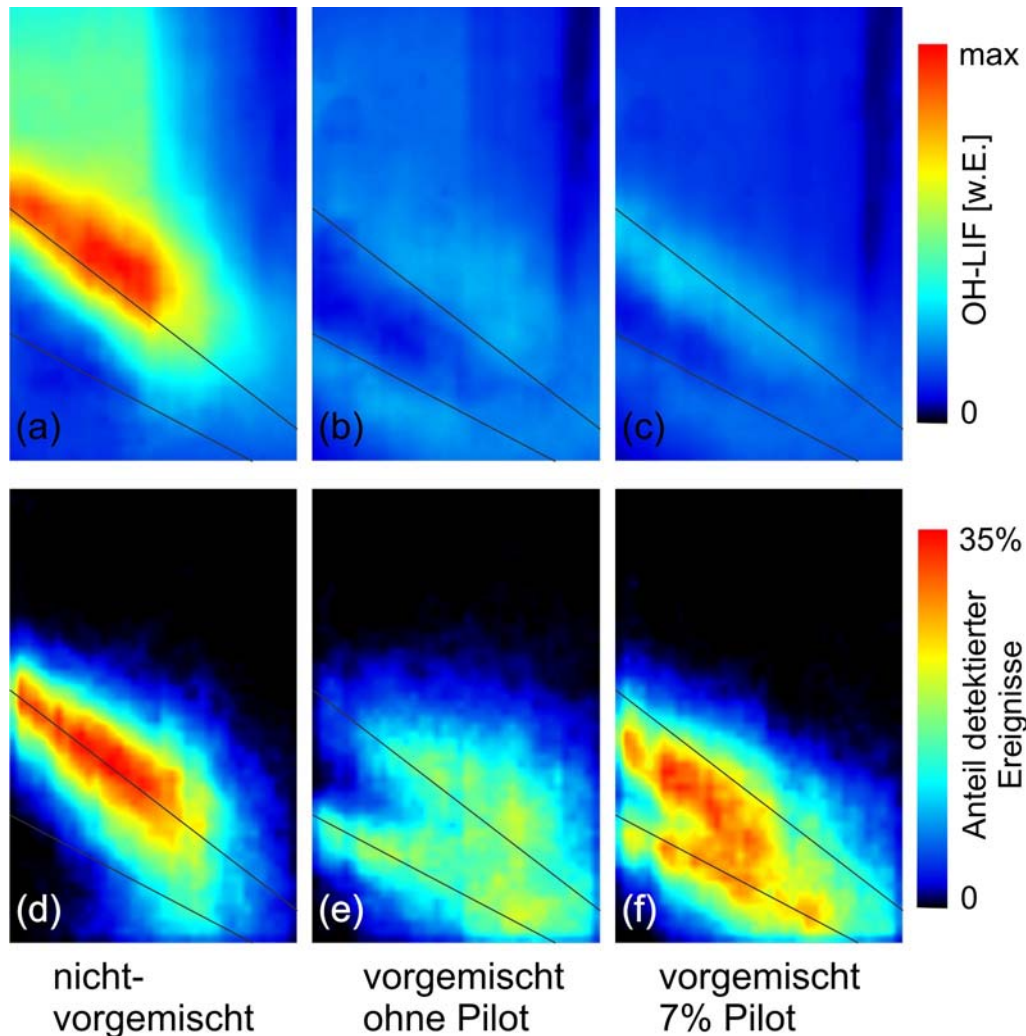


Abb. V.22: Vergleich der gemessenen OH-LIF-Intensitäten (a–c) und der Flammenfrontvorkommen (d–f). Zum Vergleich sind jeweils zwei an der nicht-pilotierten Flamme orientierte Linien (—) eingezeichnet. In der Diffusionsflamme (a) zeigte sich ein etwa 3,5-mal höheres LIF-Signal als in den vorgemischten Betriebszuständen (b und c). In der pilotierten Vormischflamme (c und f) findet man sehr schmale Zonen von äußerer Reaktionszone, Frischgasbereich und intensiver innerer Reaktionszone. Bei der unpilotierten Flamme fällt auf, dass das Vorkommen der Flammenfront (e) über einen weiten Bereich verteilt ist, die maximale Häufigkeit eines Auftretens an einem Punkt liegt daher bei nur etwa 20%.

Die relativen LIF-Intensitäten zeigen ein deutlich höheres OH-Signal bei der Diffusionsflamme. Im Schnitt findet man in den vorhandenen Messungen hier eine rund 3,5-mal höhere LIF-Intensität als in der Vormischflamme. Es ist zu beachten, dass neben den Einflüssen durch die Bildverarbeitung auch Temperatureffekte und Quencheffekte eine Rolle spielen können und somit keine quantitativen Aussagen über relative OH-Konzentrationen möglich sind.

Vergleicht man die Resultate der unpilotierten Vormischflamme (b) mit dem Ergebnis in der Diffusionsflamme (a), so zeigt sich, dass der innere Kegel der Vormischflamme weitgehend mit dem Bereich der Reaktionszone der Diffusionsflamme überlappt, sich jedoch etwas weiter in den Brennraum und zur Brennerachse hin erstreckt. Neu hinzugekommen ist eine weitere Reaktionszone nach außen hin. Diese beiden Reaktionszonen schließen das vorgemischte Frischgas ein. Im Fall der Vormischflamme *mit Pilotierung* (c) ist zu erkennen, dass das Signal im inneren Flammenkegel etwas stärker, im äußeren Flammenkegel dagegen etwas schwächer als bei der Vormischflamme *ohne Pilotierung* ist. Im Vergleich mit den anderen Betriebsarten fällt zudem auf, dass der gesamte innere Flammenkegel weiter nach außen gewandert ist.

Der Vergleich der zugehörigen Flammenfronten liefert weitere Details. In der Darstellung der Diffusionsflamme (d) ist zu erkennen, dass die Flammenfront nach außen (im Bild unten) orientiert ist. Dies ist unter anderem auch ein Hinweis auf den Mischungsbereich, in dem sich das über den Axialbrenner einströmende Erdgas mit der umgebenden verdrallten Luft zu einem zündfähigen Gemisch vermischt. Ein Vergleich der vorgemischten Betriebsmodi zeigt ebenso einige Besonderheiten. Für den unpilotierten Betrieb (e) fallen zwei Besonderheiten auf. Zum einen bewegt sich die Flammenfront über ein größeres Gebiet des beobachteten Bereiches, was sich auch in dem reduzierten Maximalwert (ca. 20%) des Auftretens der Flammenfront an einem Ort ausdrückt. Zum anderen fällt auf, dass die innere Reaktionszone nicht bis zum linken Rand des Messbereiches reicht. Dies weist auf ein mögliches Abheben der Flamme vom Brennerkopf hin. Für die pilotierte Flamme trifft beides nicht zu. Das Ergebnis in Teilbild (f) zeigt, dass die Flammenfront sich mit einer höheren Wahrscheinlichkeit in einem deutlich engeren Bereich aufhält. Der innere Reaktionsbereich ist deutlich nach außen, von der Brennerachse weg, gewandert. Zudem ist die innere Reaktionszone anhand der Flammenfronten hier auch im linken Bildteil nahe dem Brennerkopf erkennbar. Ein Abheben kann also innerhalb des untersuchten Bereiches nicht beobachtet werden.

Dieses Ergebnis wurde im Prinzip für die Vormischflammen auch in Simulationen bestätigt. Das folgende Kapitel gibt einige Ergebnisse wieder, die in der Gruppe von T. Poinsot (Computational Fluid Dynamics) am CERFACS^j in Toulouse erhalten wurden.

^j Centre Europeen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique (European Centre for Research and Advanced Training in Scientific Computation)

4.1.5 Vergleich mit der Simulation

Mit dem Ziel, Flammeninstabilitäten zu untersuchen, die in Brennern mit hohen Drallzahlen auftreten und durchaus auch zu schweren Schäden in den Systemen führen können, hat sich die CFD-Gruppe von T. Poinsoot speziell auch mit dem System am ITS befasst. Large Eddy Simulation (LES) wurde in einen Code implementiert, der die Navier-Stokes-Gleichungen für kompressible Multi-Komponenten-Fluide löst. Bei dieser Methode werden Einflüsse berücksichtigt, die als Hauptauslöser von Flammeninstabilitäten gelten. Dazu gehören die Akustik sowie Flammen/Wirbel-Wechselwirkungen. Für das hier verwendete verdickte Flammenmodell musste das kinetische Modell vereinfacht werden. Es umfasst 2 Reaktionen und 6 Spezies und berücksichtigt CO in der Reaktion. Dies erlaubt die Temperatur zum Ende der Verbrennung hin vorherzusagen [116, 119].



Das Rechengitter für die reaktiven Rechnungen umfasste 2,5 Mio. Gitterpunkte und war im Bereich der Verbrennungszone verfeinert. Mit einem Anpassungsfaktor wurden diese im Verbrennungsmodell ausgeführt und so auf das Gitter der LES angepasst.

Die nachfolgenden Abbildungen geben Ergebnisse aus diesen Rechnungen wieder. Im ersten Fall handelt es sich um Rechnungen zur vorgemischten Flamme *ohne Pilotierung*. Abb. V.23 zeigt ein instantanes Temperaturfeld in einem Längsschnitt durch den Brennraum. Bei der recht kompakten Flamme ist zu erkennen, dass die heißen Abgase der Rezirkulationszone bis zum Brennermund zurück reichen.

Eine Darstellung der Simulationsergebnisse der instantanen Wärmefreisetzung ist in Abb. V.24 wiedergegeben. Die Region der maximalen Wärmefreisetzung ist direkt mit der Flammenfront korreliert, da hier diejenigen Reaktionen ablaufen, die den größten Beitrag zur freigesetzten Wärme liefern (Kap. V.1).

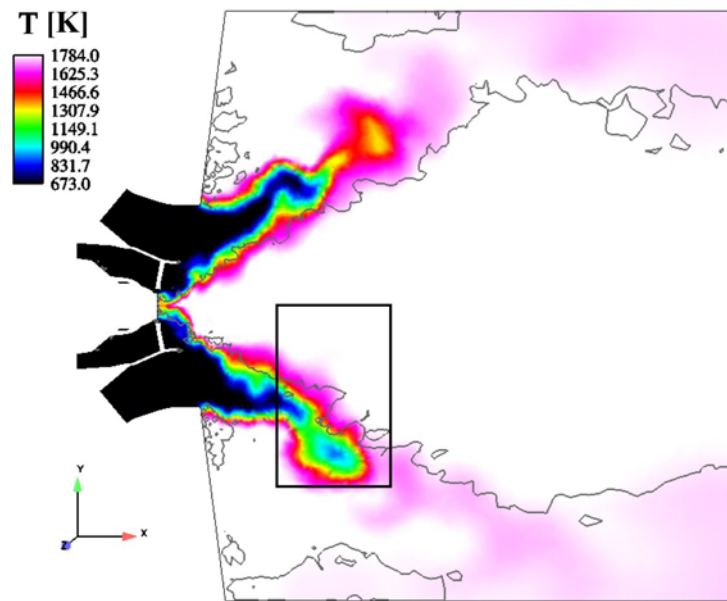


Abb. V.23: Instantanes Temperaturfeld der unpilotierten Vormischflamme (Simulation). Die Flamme ist gefaltet. Frischgaspakete trennen sich am Rand der Flamme ab. Heiße Abgase werden bis zur Brenneroberfläche zurückgeführt. Der Bereich, in dem die LIF-Messungen durchgeführt wurden, ist umrandet (□).^k

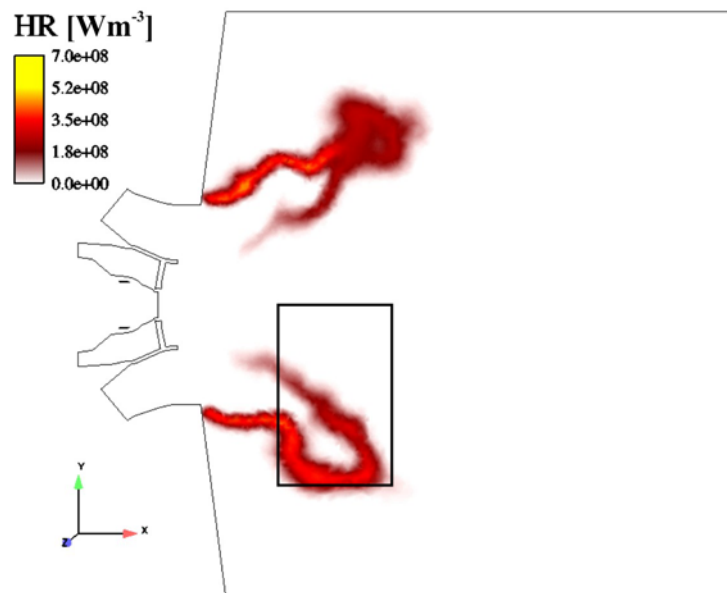


Abb. V.24: Instantanes Feld der Wärmefreisetzung (Simulation) der vorgemischten Flamme ohne Pilotierung. Die Flamme ist nur auf dem äußeren Brennerand stabilisiert. Im Inneren ist die Reaktion gestört, die innere Reaktionszone ist abgehoben.^k

^k Quelle : Selle, L., Dissertation, 2004, CFD Group, CERFACS, Toulouse, Frankreich.

Die Ergebnisse der Simulation lassen einen guten Vergleich zu den zuvor beschriebenen LIF-Messungen zu. Die Abb. V.25 gibt die Resultate aus Rechnung und Experiment im untersuchten Bereich im direkten Vergleich wieder.

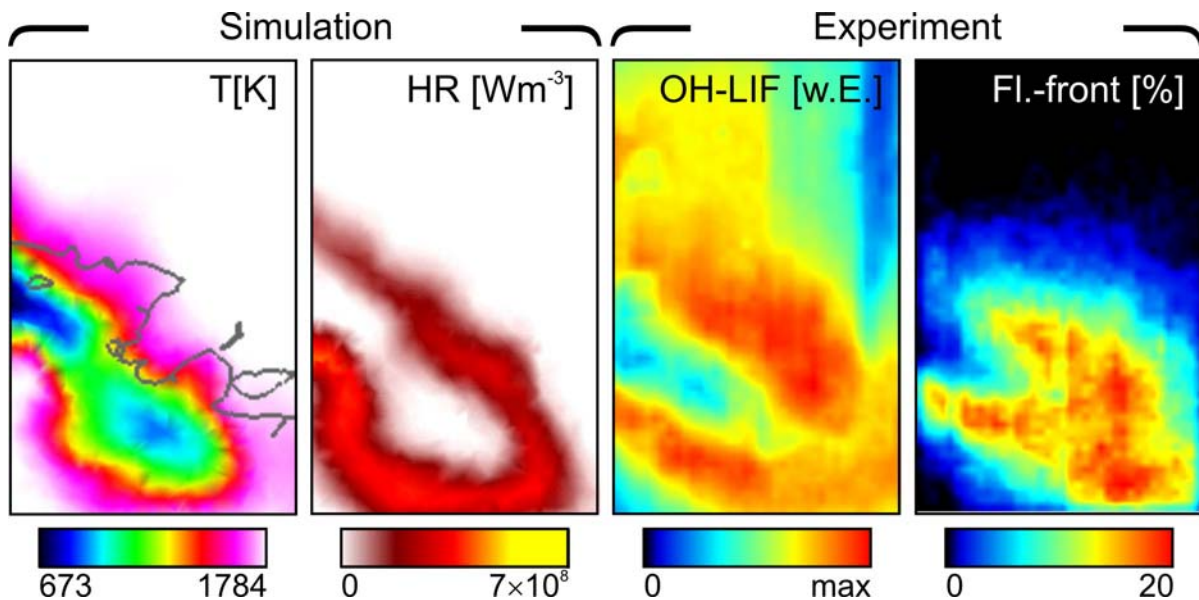


Abb. V.25: Gegenüberstellung der Ergebnisse aus Simulation und Experiment. Vorgemischter Betrieb ohne Pilotierung. Die beiden Darstellungen aus der Simulation sind Ausschnitte aus dem zuvor gezeigten instantanen Temperaturfeld bzw. der instantanen Wärmefreisetzung (HR) und bilden denselben Bereich ab, der auch mit experimentellen Methoden untersucht wurde (rechte Abbildungshälfte). Die Ergebnisse des Experimentes geben gemittelte Ergebnisse von gemessener OH-LIF-Intensität und Häufigkeit des Auftretens der Flammenfront an einem Punkt (in Prozent) wieder.

Das erste Teilbild gibt die instantane Temperaturverteilung im untersuchten Bereich in einem Zeitschritt der Simulation wieder. Im zweiten Teilbild ist der zugehörige Längsschnitt der berechneten instantanen Wärmefreisetzung zum selben Zeitpunkt abgebildet. Der dargestellte Bereich entspricht jeweils dem Messfeld in dem auch die LIF-Messungen durchgeführt wurden. Die Ergebnisse der OH-LIF-Messung (Mittelwert der Messserie) und die Flammenfrontbestimmung (Mittelung der detektierten Ereignisse) aus den gemessenen OH-LIF-Daten sind rechts dargestellt.

Die Ergebnisse aus Rechnung und Messung zeigen eine gute Übereinstimmung. Obwohl hier instantane und über 400 Einzelaufnahmen gemittelte Ergebnisse gegenübergestellt sind, zeigt sich deutlich, dass beide Resultate gleiche strukturelle Eigenschaften der Flamme wiedergeben. Obwohl nur ein Teil der Flamme, welcher optisch zugänglich war, vermessen wurde, lassen sich Gemeinsamkeiten deutlich erkennen. Neben der relativ weit aufgefalteten Flammenspitze, zeigt die Simulation, wie zuvor schon vermutet, dass die Flamme auch hier vom axialen Gitter abgehoben ist. Die Flamme ist hauptsächlich über den Rand des äußeren Diagonalbrenners

stabilisiert und es ist keine Reaktion über der Brennermitte zu beobachten. Dies ist erklärbar, da im vorliegenden Fall kein Brennstoff, sondern nur Luft, über das Axialgitter zugeführt wird, somit kann hier auch, möglicherweise aufgrund des Verdünnungseffektes, keine Reaktion stattfinden.

Im zweiten Fall der Vormischflamme *mit Pilotierung* lassen sich Simulation und Experiment ebenso gut gegenüberstellen. Durch die Zuführung von 7% des Brennstoffs über die Pilotgasdüsen (Mischungsverhältnis Erdgas/Luft unverändert) bildet sich ein fetter Bereich direkt vor der Rezirkulationszone. Diese Stabilisierung der Flamme über die Pilotierung wird hauptsächlich in Übergangsphasen und zur Stabilisierung von instabilen Zuständen eingesetzt.

In Abb. V.26 ist erneut ein Längsschnitt durch das Temperaturfeld des Brenners dargestellt.

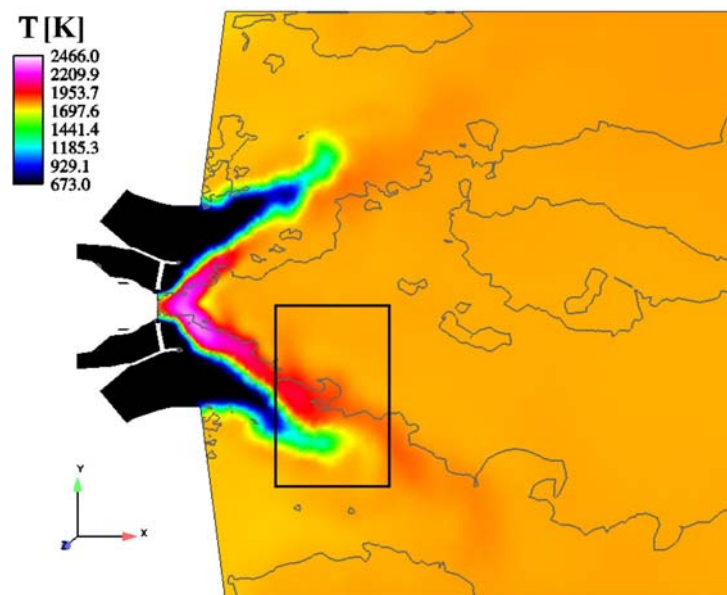


Abb. V.26: Instantanes Temperaturfeld der Vormischflamme mit 7% Pilotierung (Simulation). Es bildet sich eine kleine sehr heiße Zone direkt vor der Brenneroberfläche. Der Messbereich der LIF-Messungen ist gekennzeichnet (\square).¹

Eine sehr heiße Zone ist direkt an der Brenneroberfläche zu beobachten. Die maximale Temperatur in der Simulation erreicht 2466 K, was der adiabatischen Endtemperatur einer stöchiometrischen Verbrennung entspricht. Dies deutet auf reaktive Bereiche oder eine stöchiometrische Mischung in die dieser Region hin.

¹ Quelle: Selle, L., Dissertation, 2004, CFD Group, CERFACS, Toulouse, Frankreich.

Die Ergebnisse der Simulation der instantanen Wärmefreisetzung bestätigen diese Annahme. Eine sehr intensive Wärmefreisetzung kann direkt am Axialgitter beobachtet werden (Abb. V.27).

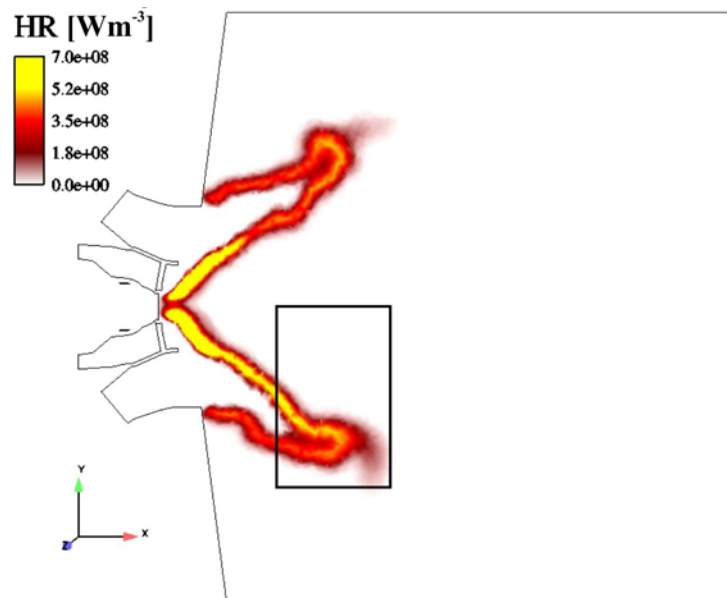


Abb. V.27: Instantanes Feld der Wärmefreisetzung (Simulation) der vorgemischten Flamme mit Pilotierung. Eine sehr intensive und nur wenig gefaltete Flamme bildet sich direkt vor dem Brenner aus und sitzt auf dessen Oberfläche auf.^m

Die Auswirkungen der Stabilisierung durch die Pilotflamme zeigen einen deutlichen Einfluss bis in den Bereich, der auch experimentell untersucht wurde. Die Annahme, die sich aus den experimentellen Daten ergab, nämlich dass die Flamme unter diesen Betriebsbedingungen deutlich näher zum Brennerkopf reicht bzw. sogar möglicherweise aufsitzt, kann im Vergleich mit den Simulationsergebnissen somit bestätigt werden. Den direkten Vergleich von Simulation und Experiment erlaubt die nächste Abbildung (Abb. V.28). Hier sind das instantane Temperaturfeld und die instantane Wärmefreisetzung aus der Simulation den experimentellen Ergebnissen gegenübergestellt. Die Abbildungen von Temperatur und Wärmefreisetzung entsprechen den in Abb. V.26 und Abb. V.27 eingezeichneten Ausschnitten der simulierten Felder und fallen mit dem experimentellen Messbereich zusammen. Die beiden rechten Darstellungen geben die experimentellen Ergebnisse für den pilotierten Vormischbetrieb wieder.

^m Quelle: Selle, L., Dissertation, 2004, CFD Group, CERFACS, Toulouse, Frankreich.

Gezeigt ist zum einen der Mittelwert des gemessenen OH-LIF-Signales über die gesamte Messserie, zum anderen das Resultat der Flammenfrontanalyse. Hierbei handelt es sich um die statistische Analyse des Aufenthaltsortes der Flammenfront im Beobachtungsfeld (in Prozent).

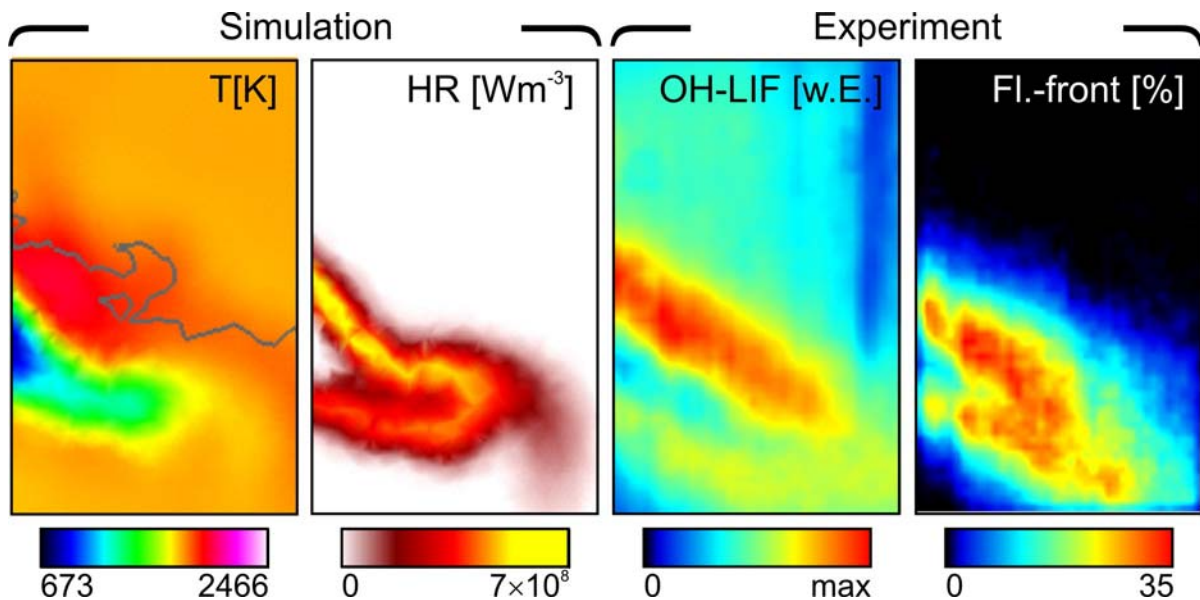


Abb. V.28: Gegenüberstellung der Ergebnisse aus Simulation und Experiment. Vorgemischter Betrieb mit Pilotierung. Die beiden Darstellungen aus der Simulation zeigen Ausschnitte aus dem instantanen Temperaturfeld bzw. der instantanen Wärmefreisetzung (HR). Der abgebildete Bereich entspricht dem, der auch mit experimentellen Methoden untersucht wurde (rechte Abbildungshälfte). Die experimentellen Ergebnisse geben gemittelte Werte von gemessener OH-LIF-Intensität und Häufigkeit des Auftretens der Flammenfront an einem Punkt (in Prozent) wieder.

Die unterschiedlichen Ansätze zeigen eine gute Übereinstimmung. Im Vergleich von Wärmefreisetzung (HR) und OH-LIF-Daten zeigt sich, dass der intensive Mittelbereich der inneren Reaktionszone in beiden Fällen sehr deutlich ist, was auf eine sehr robuste Flamme hindeutet, die in der Lage ist, die Verbrennung im gesamten Brennraum zu stabilisieren. Auch die Struktur und die viel geringere Aufweitung der Flammenenden sind in beiden Resultaten in guter Übereinstimmung. Die äußere Partie der Flamme ist im Vergleich zum nicht-pilotierten Betrieb dagegen nur wenig beeinflusst. Betrachtet man Wärmefreisetzung und die statistische Analyse der Flammenfront, welche direkt miteinander in Bezug stehen, so wird hier in besonderem Maße die strukturelle Eigenart der Flamme wiedergegeben. Der intensive mittlere Part der Reaktionszone weist neben seiner stärkeren Ausprägung auch einen steileren Öffnungswinkel auf (untere Hälfte der genähert rotationssymmetrischen Flamme) und reicht nicht so weit in den Brennraum hinein wie die Reaktionszone des äußeren Flammenkegels oder z.B. auch die Reaktionszone im Fall der unpilotierten Flamme (s. Abb. V.25).

4.2 Instationärer Betrieb – phasenaufgelöste Messungen

Unter bestimmten Betriebsbedingungen ist es möglich, dass die Verbrennung im oben beschriebenen Brenner ein instationäres Verhalten aufweist, d.h. die Flamme weist starke zeitliche Fluktuationen auf. In diesem Fall treten in der Brennkammer akustische Schwingungen auf, die sich bei einem Erreichen einer Resonanzfrequenz zu verstärkten Schwingungen aufschaukeln können. Dieses Verhalten stellt im realen Fall eines technisch genutzten Brenners (Gasturbine) ein Gefährdungspotential dar, da es zu einer verstärkten Materialbeanspruchung kommt und darüber hinaus ein Verlöschen der Flamme möglich ist, was eine weitere Gefahrenquelle darstellt. Dabei auftretende Temperaturspitzen in der Verbrennung führen darüber hinaus noch zu einem erhöhten Ausstoß an Stickoxiden.

Untersuchungen am beschriebenen Teststand haben ergeben, dass unter reaktiven Bedingungen ein unterschiedliches akustisches Verhalten, abhängig von dem zugeführten Äquivalenzverhältnis von Brennstoff und Luft, zu beobachten ist [115, 120]. Während bei Äquivalenzverhältnissen bis etwa $\Phi \approx 0,71$ erste akustische Schwingungen beobachtet werden können, findet man bei $\Phi \approx 0,75$ einen Übergangsbereich, bei dem die Schwingungsamplituden nicht kontinuierlich zunehmen, sondern unvermittelt zwischen starken und schwachen Amplituden wechseln. Bei Äquivalenzverhältnissen von $\Phi > 0,77$ nehmen die Amplituden der Schwingungen schließlich stetig und rasch zu. Die Frequenz der Schwingungen liegt über den gesamten untersuchten Äquivalenzbereich zwischen 250 und 255 Hz.

Um das Verhalten bei unterschiedlich starken Oszillationen untersuchen zu können, wurden zwei instationäre Betriebsmodi (jeweils ohne Pilotierung) gewählt:

- Vorgemischter Betrieb mit $\Phi = 0,71$ — schwache Oszillationen
- Vorgemischter Betrieb mit $\Phi = 0,83$ — starke Oszillationen

Neben numerischen Simulationen, durchgeführt von L. Selle [116] am CERFACS in Toulouse, wurden von K. Schildmacher [115] experimentelle phasenaufgelöste Untersuchungen der auftretenden Schwingungen durchgeführt, um den eigentlichen Auslöser der Oszillationen zu finden. Mittels Quarz-Drucksensoren in Plenum und an verschiedenen axialen und radialen Positionen in der Brennkammer wurde der Druck phasenaufgelöst gemessen, sowie mittels Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) Strömungsgeschwindigkeiten bestimmt. Es konnte nach-

gewiesen werden, dass die auftretenden Schwingungen in Plenum und Brennkammer, hier sogar unabhängig von der Position der Drucksensoren, in Phase sind. Diese Tatsache weist darauf hin, dass sich keine stehende Welle, sondern vielmehr eine Helmholtz-Mode in der Brennkammer ausbildet. Das Plenum stellt dabei einen *Helmholtz-Resonator* dar. Das Plenum kann vereinfacht als Resonanzraum betrachtet werden, der durch eine enge Röhre (Brennerkopf) nach außen (Brennkammer) offen ist. Das eingeschlossene Luftvolumen besitzt eine gewisse Elastizität, die in Kombination mit der trägen Masse der in der Öffnung befindlichen Luft ein mechanisches Masse-Feder-System bildet. Dieses ist wiederum durch eine ausgeprägte Eigenresonanz charakterisiert [121]. Diese Eigenschaft wurde schließlich genutzt, um die Eigenresonanz des Plenums als eigentlichen Auslöser der Fluktuationen zu identifizieren. Neben den Druckschwankungen im Plenum wurden auch Oszillationen im Brennraum gemessen. Sollten diese Oszillationen in der Brennkammer einen Einfluss auf das Gesamtsystem haben, so sollte sich mit dem Äquivalenzverhältnis, und folglich der einhergehenden Temperaturänderung, auch die Resonanzfrequenz des Systems ändern. Es wurde jedoch beobachtet, dass das Äquivalenzverhältnis keinen Einfluss auf die Resonanzfrequenz hat. Dagegen zeigte sich eine deutliche Änderung der Eigenfrequenz des Plenums, als die Temperatur der zugeführten Verbrennungsluft geändert wurde. Da die Eigenfrequenz eines Helmholtz-Resonators f proportional von der Schallgeschwindigkeit abhängt, ist sie ebenso auch von der Temperatur abhängig ($f \propto T^{1/2}$). Mit sinkender Temperatur wurde somit auch eine niedrigere Frequenz gemessen und es konnte festgestellt werden, dass das Verhältnis $f / T^{1/2}$ weitgehend konstant blieb. Diese Tatsache weist damit eindeutig auf das Plenum als Ursprung der Fluktuationen im System hin.

Der Mechanismus, der hinter der Schwingungsanregung in der Brennkammer steckt, ist eng mit dem Geschehen im Plenum verknüpft. Es konnte nachgewiesen werden, dass zwischen den Oszillationen in Plenum und Brennkammer eine Phasenverschiebung besteht. Obwohl der Druckverlust über den Brenner stets positiv ist, also immer Luft vom Plenum in die Brennkammer strömt, findet man zusätzlich eine periodisch fluktuierende Druckkomponente. Diese führt dazu, dass die Luft, welche durch die treibende Druckdifferenz durch den Brenner strömt, verzögert bzw. beschleunigt wird. Da das Erdgas weiterhin unverändert ausströmt, kommt es im Moment der verzögerten Strömung zur Bildung eines fetten, bei beschleunigter Strömung zur Bildung eines mageren Brennstoffgemisches. Das Resultat sind periodische Kraftstofffluktuationen. Fette Brennstoffpakete werden konvektiv in die Brennkammer transportiert. Bei Erreichen der Reaktionszone kommt es zur Zündung der Brennstoffpakete und folglich auch zu erhöhter Wärmefreisetzung. Die dadurch hervorgerufene Dichteänderung führt

wiederum zu einem Anstieg der Amplitude des Brennkammerdruckes und zu einem deutlichen Anstieg der axialen Strömungsgeschwindigkeit in der Scherzone zwischen Hauptströmung und Rezirkulationszone. Bei stark oszillierender Verbrennung finden sich zusätzlich starke Geschwindigkeitsfluktuationen im Rezirkulationsgebiet der Flamme. Dabei verhalten sich die Druckamplituden in der Reaktionszone bzw. in der Rezirkulationszone gegenphasig bevor sie stromab dissipieren. Dieses Verhalten führt zu einem Pumpen der Flamme. Besonders betroffen ist dabei auch die Flammenfront, da sie stark auf das lokale Verhältnis von Umfangs- und Axialgeschwindigkeit reagiert, welches für die Drallstabilisierung der Flamme entscheidend ist. Bei dem beobachteten Zusammenbruch der Drallstabilisierung ist ein massiver Rückgang der Reaktionsrate zu verzeichnen, sogar ein lokales Verlöschen der Flamme ist möglich, bevor ein Wideranstieg der Reaktionsrate, aufgrund neu eintreffender brennstoffreicher Gaspakete, zu einer erneuten Stabilisierung führt. Bezüglich des Druckes in der Brennkammer wurden bei den starken Oszillationen Amplituden gemessen, die relativ zu den schwachen Oszillationen auf das 20-fache angestiegen und für einen extrem lauten Geräuschpegel ($>150 \text{ dB}^n$) verantwortlich waren. Da sich die Druckschwankungen verstärkend mit den Wärmefreisetzungsfluktuationen überlagern, handelt es sich hier vorwiegend um selbsterregende Brennkammerschwingungen aufgrund einer thermoakustischen Rückkopplung. Der konvektive Transport brennstoffreicher Gaspakete ist nur von untergeordneter Bedeutung.

Detaillierte Ausführungen der beschriebenen Einflussparameter, wie die phasenbezogenen Druckveränderungen, Strömungsverhältnisse, Dralleigenschaften und ihre komplexen Zusammenhänge sind ebenso wie weiterführende Referenzen in der umfassenden Arbeit von K. Schildmacher zusammengefasst [115].

Die in den beiden nachfolgenden Kapiteln dargestellten OH-LIF-Messungen wurden ergänzend zu den Messungen von Schildmacher in Zusammenarbeit mit dem ITS Karlsruhe durchgeführt, um die Auswirkungen der beschriebenen Oszillationen und weitere Besonderheiten der beiden gewählten Äquivalenzverhältnisse zu untersuchen.

Für die Durchführung der phasenaufgelösten Messungen wurde der schwankende Druck im Plenum benutzt, um das Kamerasystem definiert phasenabhängig auszulösen. Dazu wurde über Quarz-Drucksensoren im Plenum der Druck gemessen und nach Signalfilterung ein Triggersignal an definierten Punkten der Druckverlaufskurve erzeugt. Dieses diente schließlich

ⁿ zum Vergleich: Geräuschpegel einer Concorde beim Start ca. 120 dB.

zur Ansteuerung des Aufnahmesystems. Es gelang somit den zyklischen Verlauf der Instabilitäten sichtbar zu machen. Die im Folgenden angegebenen Phasenwinkel φ sind die am Drucksensor im Plenum gemessenen Werte.

Analog der Beschreibung in Kapitel V.3 wurden die gemessenen Daten auch hier weiterverarbeitet, jedoch wurde auf eine Flammenfrontanalyse verzichtet, da die Belastung der optischen Zugänge, die aufgrund der hohen thermischen Leistung des Systems bei diesen Betriebsbedingungen rasch unbrauchbar wurden, nicht genügend Einzelmessungen für eine brauchbare Statistik erlaubte. Die präsentierten Resultate zeigen gemittelte OH-LIF-Intensitätsverteilungen, die jeweils bei einem festen Phasenwinkel aufgenommen wurden. Aufgrund der starken Belastungen für das Brennersystem und nicht zuletzt zur Schonung der optischen Zugänge wurde nur an der vordersten Laserposition gemessen. Der Messbereich lag hier 43 mm hinter dem Brenneraustritt und hatte eine Breite von 36 mm und eine Höhe von 106 mm. Auch hier entspricht der oberste Bildrand der Brennerachse (Abb. V.29).

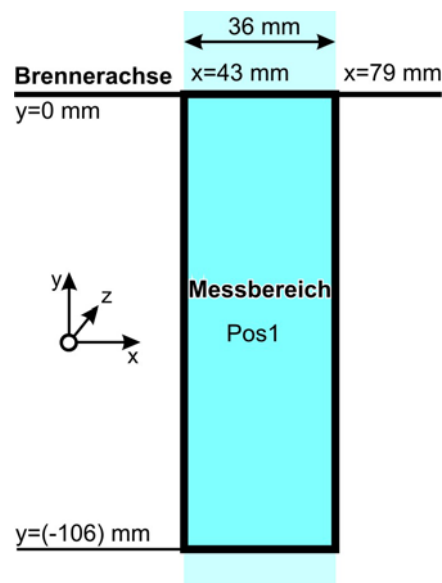


Abb. V.29: Messbereich der instationären Messungen. Es wurde nur die vordere der beiden möglichen Positionen untersucht. Die Brennerachse entspricht dem oberen Bildrand der nachfolgenden Aufnahmen.

4.2.1 Schwache Oszillationen ($\Phi = 0,71$)

Bei den Experimenten wurde auch ein Betriebspunkt gewählt, bei dem nur schwache Fluktuationen auftreten. Es wurde hierzu die Vormischflamme *ohne Pilotierung* bei einem

Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0,71$ vermessen. Die untersuchten Phasenwinkel sind äquidistant (45°) an charakteristischen Punkten der Druckverlaufskurve im Plenum ausgerichtet. Das schwankende Signal, welches sich abwechselnd als senkrechter Streifen im Bild zeigt, ist auch hier wieder auf ein zeitlich veränderliches Hintergrundsignal zurückzuführen. Die abgebildeten Aufnahmen entstammen zwei Messserien, wobei jede zweite Abbildung zu einem späteren Zeitpunkt entstanden ist.

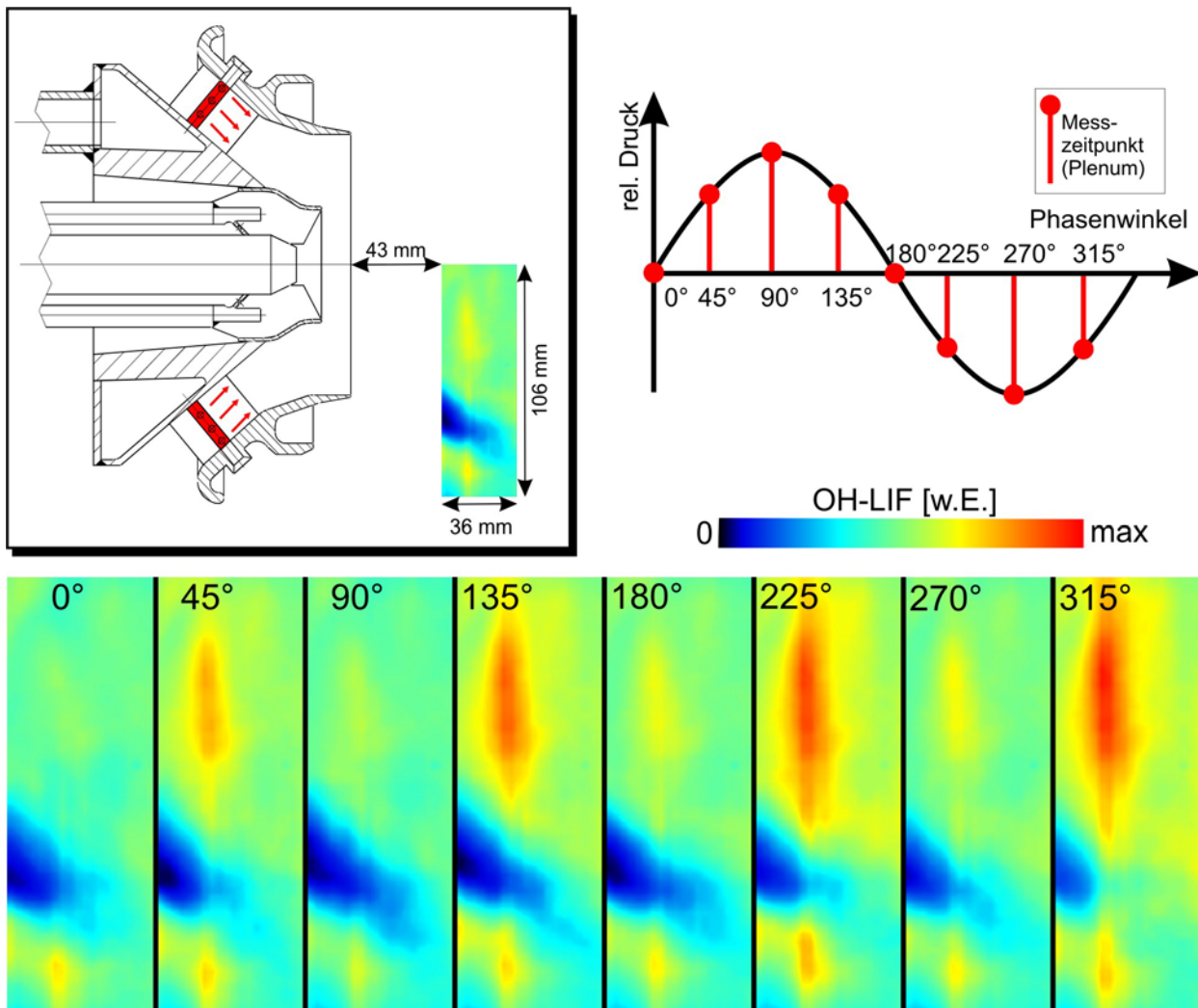


Abb. V.30: Phasenaufgelöste Aufnahmen in der Vormischflamme bei Äquivalenzverhältnis $\Phi = 0,71$. Die Messposition relativ zum Brenner ist im linken oberen Teil des Bildes maßstäblich dargestellt. Die Bildserie im unteren Bildteil gibt acht gemittelte OH-LIF-Messungen bei den angegebenen Phasenwinkeln wieder. Die systematischen Intensitätsänderungen des LIF-Signals sind bedingt durch den Messablauf (s. Text).

Aufgrund der starken Belastung der optischen Zugänge unter diesen Bedingungen führt die einsetzende Beschädigung der Fenster in der später aufgenommenen Bildserie zu verstärkten Reflexen im Hintergrund des Aufnahmebereiches. Dies wird an dem stetigen Anstieg des

Hintergrundes innerhalb einer Serie bereits deutlich. Diese Reflexe können aus den schon zuvor genannten Gründen nicht korrigiert werden, ohne manuell massiv in die Daten einzugreifen (s. Kap. V.3.2).

Der Betriebspunkt mit Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0,71$ weist relativ geringe Einflüsse des Druckes auf (Abb. V.30). Über den gesamten Druckverlauf sieht man lediglich für den niedrigen Druckbereich nahe dem Minimum bei einem Phasenwinkel zwischen 225° und 315° ein schwaches Rückdriften der Frischgaszone zum Brenner hin.

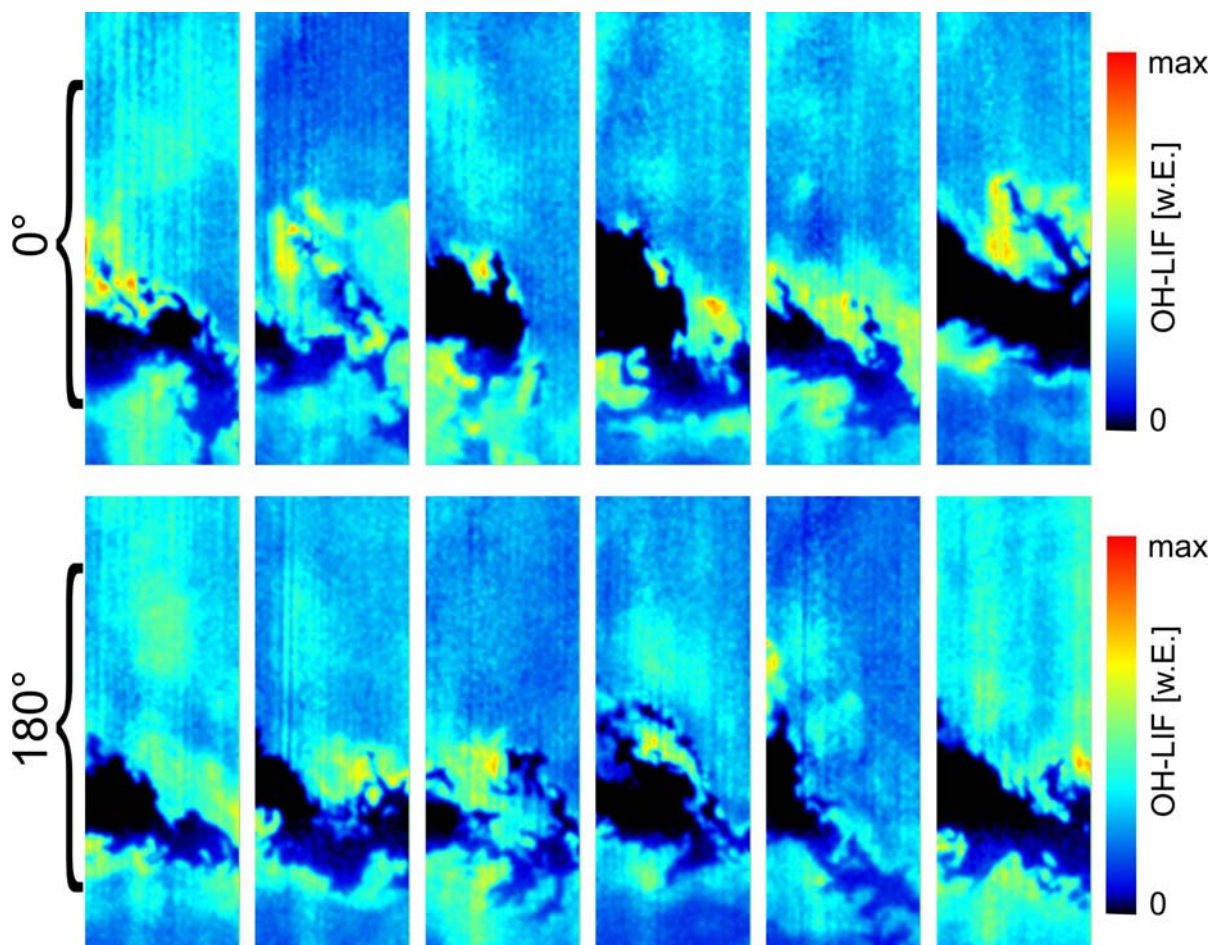


Abb. V.31: Instantane Einzelbildaufnahmen der OH-LIF-Intensität in der Flamme bei schwachen Oszillationen. Gemessen wurde jeweils am Wendepunkt der Druckverlaufskurve (gemessen im Plenum). An diesen Punkten zeigen sich Auswirkungen der jeweiligen Druckmaxima und -minima im Plenum.

Als Auslöser für die relativ schwachen Fluktuationen wurde, wie von Schildmacher [115] beschrieben, die Resonanz des Plenums identifiziert (siehe auch oben). Durch die Oszillation der treibenden Druckdifferenz zwischen Plenum und Brennkammer werden wegen des konstanten Brennstoffzustroms fette und magere Gaspakete erzeugt, die bei Regeneration des positiven Druckgradienten in die Brennkammer transportiert werden. Bei Erreichen der

Reaktionszone kommt es durch Zündung dieser Pakete zu einer starken Wärmefreisetzung. Als Folge der dadurch erzeugten Dichteänderungen lassen sich mehr oder weniger starke Geschwindigkeitsfluktuationen im Bereich der Reaktionszone messen. Durch Rückkopplung der Geschwindigkeitsfluktuationen auf die Resonanz im Plenum werden die Schwingungen im System aufrechterhalten.

Betrachtet man die Flamme im Detail, so zeigt sich auch in den Einzelbildern der Messung kein untypisches Verhalten der Flamme. Die folgende Abbildung zeigt eine Auswahl von LIF-Einzelbildaufnahmen bei zwei Phasenwinkeln (0° , 180°), die das Verhalten der Flamme jeweils nach einem Phasenmaximum und -minimum im Plenum widerspiegeln (Abb. V.31). Der Zeitunterschied entsteht unter anderem durch die Zeit, die für den konvektiven Transport der Gaspakete bis zur Reaktionszone benötigt wird.

Der Einfluss der Fluktuationen bei diesem Betriebspunkt ist, wie die LIF-Messungen zeigen, relativ gering. Die Dämpfung durch den Brenner und die Brennkammer also noch relativ gut.

4.2.2 Starke Oszillationen ($\Phi = 0,83$)

Die zweite Betriebsart, in der die Anlage betrieben wurde um instationäres Verhalten zu untersuchen, war der unpilotierte vorgemischte Betrieb bei einem Äquivalenzverhältnis von $\Phi = 0,83$. Bei diesem Betriebsmodus waren bei Strömungsuntersuchungen starke akustische Schwingungen und ein ausgeprägt instationäres Verhalten beobachtet worden [115]. Als Besonderheit treten bei diesem Betriebspunkt Geschwindigkeitsfluktuationen auch innerhalb der Rezirkulationszone auf, die in Phase mit der Hauptströmung sind, und führen zu einer Pumpbewegung der Strömung. Zudem ist die Flamme zwischen Rezirkulationszone und Hauptströmung stabilisiert. In diesem Bereich treten jedoch auch die größten Geschwindigkeitsgradienten auf. Damit wird die Flamme sehr sensitiv für Instabilitäten.

Die Auswirkung auf die Verbrennungsprozesse wurde mittels Messungen der OH-LIF-Intensitäten im Bereich der reaktiven Zone untersucht. Die Ergebnisse, die hierbei erhalten wurden (Abb. V.32) zeigen eine viel stärkere gegenseitige Rückkopplung von akustischen Schwingungen und Fluktuationen in der Verbrennung als im vorherigen Fall.

Die Bildserie zeigt das Verhalten der Flamme zu verschiedenen Zeitpunkten eines gesamten Zyklus anhand der zeitlich gemittelten Einzelbildaufnahmen der Flamme. Zu Beginn des Druckanstieges im Plenum (90° bzw. 135°) bildet sich langsam eine definierte Flamme aus, deren Reaktionszone zu beiden Seiten des Frischgaskegels gelegen ist. Neben dem nun deutlich erkennbaren Frischgaskegel fällt auf, dass sich auch der Öffnungswinkel der Flamme langsam

ändert. Der Öffnungswinkel wird kleiner. Die beschriebene Pumpbewegung der Flamme ist sehr gut zu sehen.

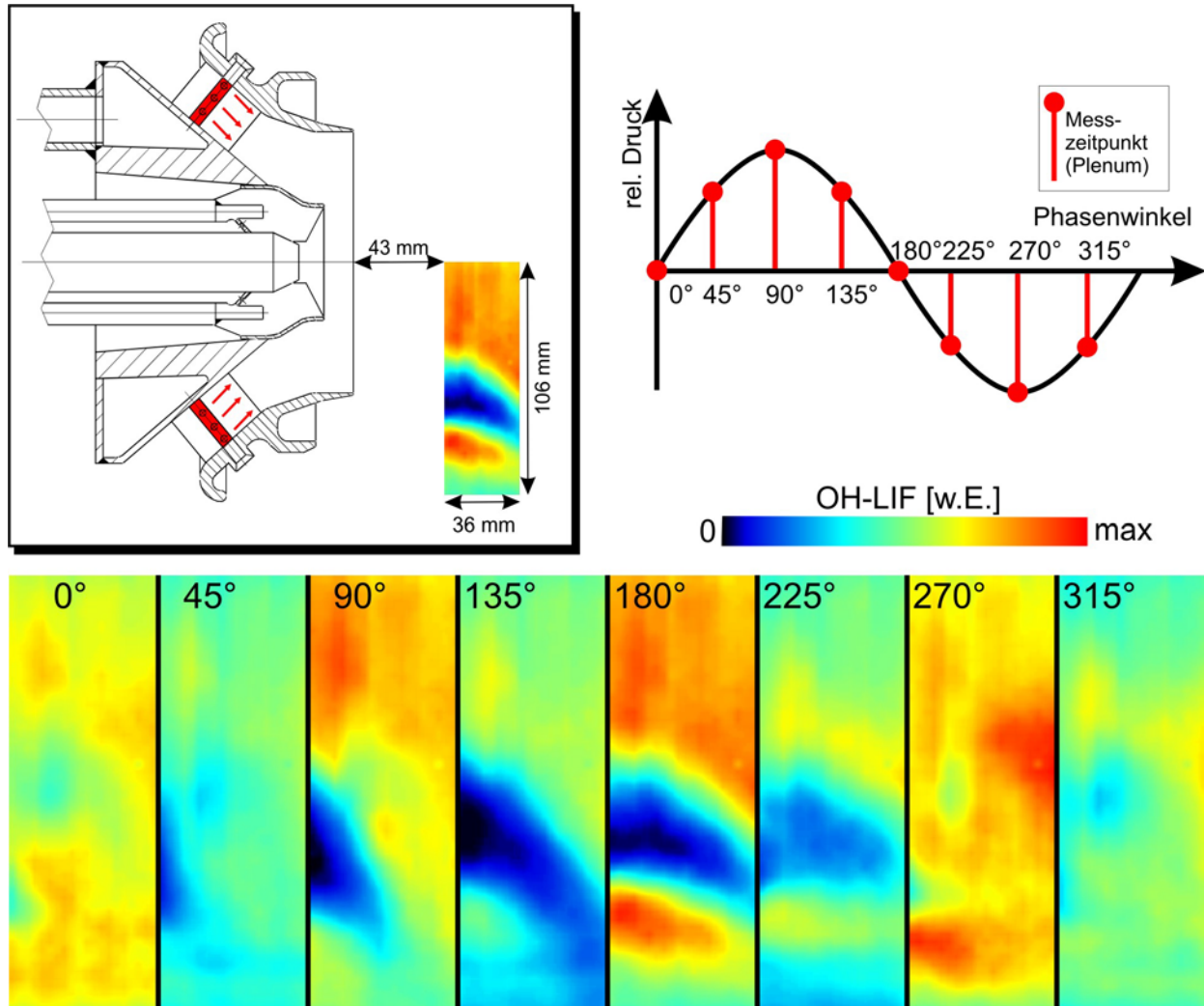


Abb. V.32: Phasenaufgelöste Aufnahmen in der Vormischflamme beim Äquivalenzverhältnis $\Phi = 0,83$. Im oberen Teil ist die Messposition relativ zum Brenner dargestellt. Die gemittelten OH-LIF-Messungen bei acht Phasenwinkeln ist im unteren Bildteil wiedergegeben. Die systematischen Änderungen der Hintergrundintensität sind messbedingt.

Bei Phasenwinkeln zwischen 150° und 270° wurden von Schildmacher [115] sehr starke Fluktuationen des Verhältnisses von radialer zu axialer Strömungsgeschwindigkeit berichtet, welches für die Drallstabilisierung der Flamme von Bedeutung ist. Das Geschwindigkeitsverhältnis nimmt bis zu einem Phasenwinkel von 210° drastisch ab. Die Drallstabilisierung, welche durch hohe Umfangsströmungsgeschwindigkeiten für die Ausbildung der stabilisierenden Rezirkulationszone sorgt, ist nahezu zusammengebrochen. Die Konsequenz daraus ist klar erkennbar, wenn man die gemittelten OH-LIF-Aufnahmen der Flamme nach dem Minimum

des fluktuierenden Dralls (210°) betrachtet. Bei einem Phasenwinkel von 225° scheint sich die Flamme förmlich aufzulösen, bei 270° ist keine Aufteilung der Flammenbereiche in unverbranntes Frischgas-, Reaktions- oder Rezirkulationszone mehr zu erkennen. Tatsächlich ist in den LIF-Aufnahmen keine definierte Flamme mehr erkennbar, die Flamme ist vollständig kollabiert. Erst bei langsam wieder ansteigendem Druck im Plenum (45°) sieht man am linken Bildrand erneut einen sich aufbauenden Bereich von Frischgas, der sich in den Brennraum schiebt, bevor der Zyklus von neuem beginnt.

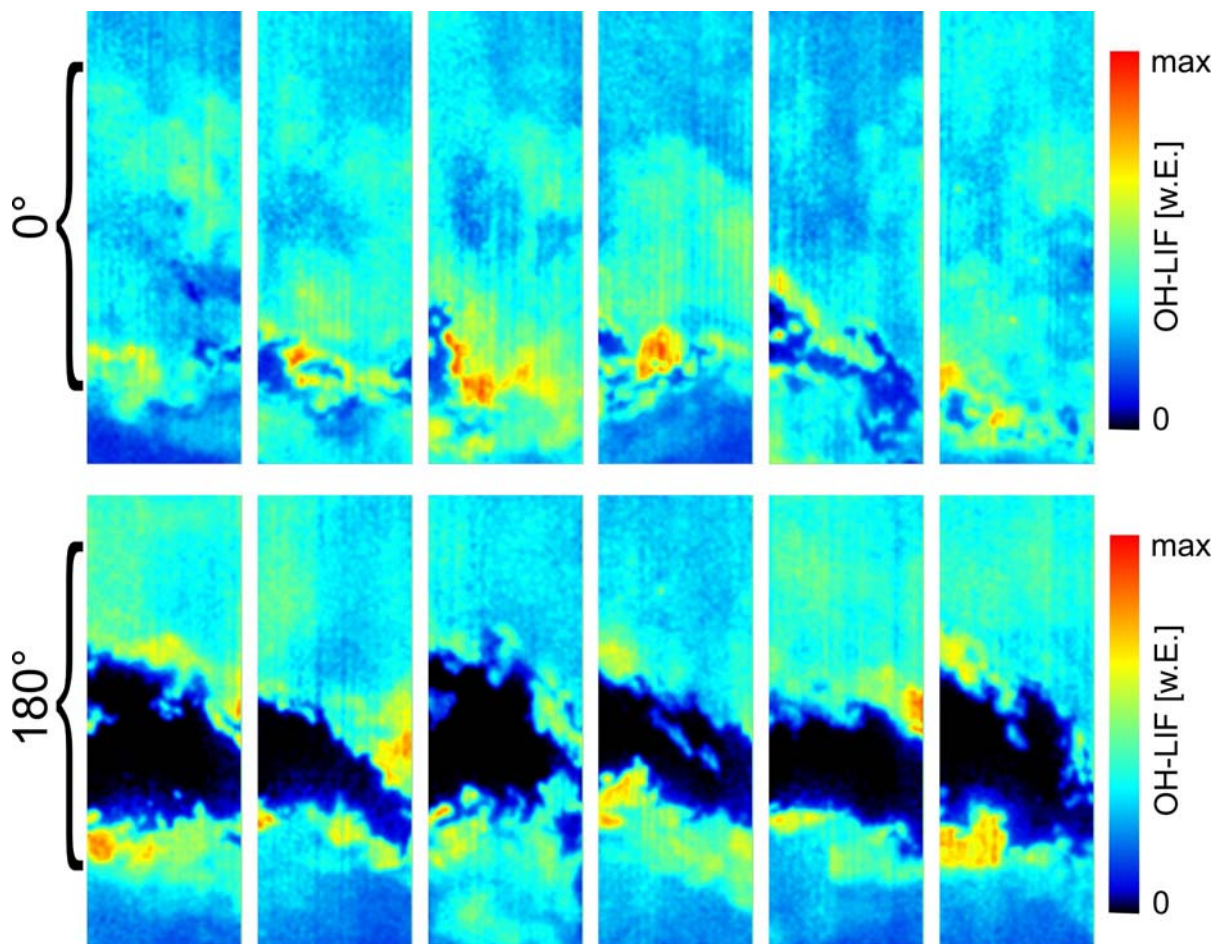


Abb. V.33: Instantane Einzelaufnahmen der OH-LIF-Intensität in der Flamme bei starken Oszillationen. Gemessen wurde jeweils am Wendepunkt der Druckverlaufskurve (gemessen im Plenum), an denen die Auswirkungen der jeweiligen Druckmaxima und -minima im Plenum gut zu erkennen waren. Unten: Intakte Flamme. Im Vergleich zu schwachen Oszillationen keine merklichen Veränderungen. Oben: Die Aufteilung der Teilräume der Flamme (Frischgas, umgebendes Gas, Rezirkulationszone) ist vollständig aufgelöst. Die Stabilisierung der Flamme ist weitestgehend zusammengebrochen.

Die auffälligen systematischen Intensitätsschwankungen im Wechsel der Bilder ist messbedingt, da in zwei nacheinander folgenden Testläufen (45° , 135° , ... und 0° , 90° , ...) gemessen wurden. Obwohl am optischen Aufbau keine Veränderungen vorgenommen worden

waren, ist bei der zweiten Messung ein deutlich höherer Signalpegel zu verzeichnen. Grund dafür ist die massiv fortschreitende Schädigung der optischen Zugänge, die aufgrund der extremen Bedingungen in der Brennkammer noch deutlich rascher voranschritt als bei den Messungen bei Äquivalenzverhältnis $\Phi = 0,71$. Binnen weniger Minuten war mit bloßem Auge eine Eintrübung der optischen Zugänge zu bemerken. Diese Eintrübungen bewirken ein sich rasch veränderndes Streuverhalten in der Brennkammer, das bei der Auswertung nicht unterdrückt werden konnte, ohne die Daten stark zu manipulieren.

Die obige Betrachtung der Flammeneigenschaften bedient sich der Informationen aus den gemittelten LIF-Ergebnissen bei den unterschiedlichen Phasenwinkeln. Darüber, wie sich die Fluktuationen im Detail auswirken, geben aber auch hier wieder die instantanen Einzelaufnahmen bei zwei verschiedenen Phasenwinkeln Auskunft (Abb. V.33).

Die Teilbilder geben jeweils einige Einzelaufnahmen mit intakter Flammenstruktur (180°) und nach Zusammenbrechen der Drallstabilisierung (0°) wieder. Bei der intakten Flamme (180°) lassen sich klar Frischgasbereich und die daran anschließenden reaktiven Zonen ausmachen. Die Gradienten, die in der unteren Bildserie auszumachen sind, weisen auf eine weitestgehend intakte Flammenfront hin. Auch die Rezirkulationszone stellt sich relativ homogen dar. Ein gänzlich gegenteiliges Bild ergibt sich bei Betrachtung der Aufnahmen beim Phasenwinkel von 0° . Nicht nur, dass die klare Differenzierung der unterschiedlichen Flammenbereiche relativ schwer fällt, auch der Bereich der Rezirkulationszone weist inhomogene Bereiche auf. Zudem ist die reaktive Zone sehr stark verwirbelt. Nur ungleichmäßig verteilte brennende Gaspakete sind zu erkennen, welche die Verbrennung nur unzureichend unterhalten.

VI. Zusammenfassung

Turbulente Flammen spielen bei der Energieumwandlung in vielen technischen Bereichen eine bedeutende Rolle. Ein genaues Verständnis der ablaufenden Prozesse ist aus Effizienz- und Sicherheitsgründen von grundlegender Bedeutung. Um die ablaufenden Prozesse besser zu verstehen und kontrollieren zu können, bedient man sich heute in zunehmendem Maße der Modellierung oder Simulation von Verbrennungsprozessen. Mit Hilfe der Direkten Numerischen Simulation (DNS) versucht man, reaktive Strömungen möglichst detailliert nachzubilden. Eine vollständige Simulation einer realen Flamme technischen Maßstabs ist damit aber aufgrund der Komplexität selbst mit modernsten Großrechnern noch nicht möglich. Daher bedient man sich oft vereinfachter Methoden, die sich vor allem auf die Entkopplung der einzelnen Prozesse, wie Verbrennung und Transport, stützen. Bei der Large Eddy Simulation (LES) der Verbrennung werden z.B. große Wirbelstrukturen der Strömung („Eddies“) direkt simuliert, während kleine Wirbelstrukturen in Form ihrer Mittelwerte modelliert werden. Auch bei der Simulation der Verbrennungsprozesse sind Vereinfachungen möglich, indem nicht jede Spezies oder jeder Zustand der Reaktion explizit und detailliert simuliert, sondern über Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (PDFs) beschrieben werden. Es existieren jedoch Beziehungen zwischen einzelnen Spezies, deren Konzentrationen, Gradienten und skalaren Größen, wie z.B. der Temperatur. Sind diese Beziehungen bekannt, können sie in die Simulation mit einbezogen werden. Dadurch reduziert sich der nötige Rechenaufwand erheblich. Diese Zusatzinformationen können durch gezielte experimentelle Untersuchungen gewonnen werden.

Bei der Untersuchung von Verbrennungsvorgängen haben daher bildgebende spektroskopische Verfahren, wie die abbildende laserinduzierte Fluoreszenz (LIF), in den vergangenen beiden Jahrzehnten eine große Bedeutung gewonnen. Sie sind in der Lage, örtlich aufgelöste Speziesinformationen zu liefern, welche Aufschluss über lokale Flammenstruktur, lokale Konzentrationen und ablaufende Prozesse geben. Dabei muss sich die erhaltene Information nicht zwangsweise nur auf einzelne Schnitte im beobachteten Volumen beschränken. Durch gezielte Anordnung von Messebenen lassen sich auch räumliche Speziesverteilungen untersuchen. Aus diesen können wiederum Informationen über lokale räumliche Struktur, Konzentrationsgradienten und deren räumliche Ausrichtung abgeleitet werden. Die Kombination mit anderen Messmethoden erlaubt zudem, z.B. durch simultane Temperatur- oder Multispeziesmessungen die Untersuchung von Korrelationen zwischen den unterschiedlichen Messgrößen. Diese Informationen können zur Vereinfachung der Simulationsansätze hinzu-

gezogen werden. Neben den Vereinfachungen spielen auch die Validierung und Verbesserung von Simulationsergebnissen eine entscheidende Rolle. Unter diesen Gesichtspunkten wurden die Experimente der beiden Teilprojekte dieser Arbeit durchgeführt.

Ziel des ersten Projektes war die Untersuchung von räumlichen Konzentrationsgradienten von OH in einer vorgemischten Erdgas/Luft-Flame und die Analyse von Beziehungen zwischen den Gradienten, der Konzentration und weiteren skalaren Größen, wodurch sich Korrelationen aufstellen lassen, die zur Vereinfachung der Simulation dienen können. Das zweite Projekt befasst sich dagegen mit den praktischen Problemen der vorgemischten Verbrennung. Bei der technischen Anwendung vorgemischter Flammen gibt man mageren vorgemischten Flammen den Vorzug, da sie sich vor allem durch einen verminderten Schadstoffausstoß auszeichnen. Dies macht man sich z.B. beim Betrieb von Gasturbinen zu Nutzen. Gasturbinen finden als stationäre Aggregate Einsatz in der Energieumwandlung, da sie vor allem in kombinierten Kraftwerksanlagen (Gas- und Dampf-Prozess) einen hohen Wirkungsgrad aufweisen oder sie werden als Triebwerksturbinen im Flugzeugbau eingesetzt. Beim Einsatz der stationären Gasturbinen finden verschiedene Betriebsmodi Verwendung. In An- und Abfahrphasen werden meist die stabileren nicht-vorgemischten Flammen eingesetzt, während im Normalbetrieb hauptsächlich die mageren Vormischflammen bevorzugt werden. Die niedrigeren Verbrennungstemperaturen gehen unmittelbar mit einem verminderten Stickoxidausstoß einher, jedoch führen Brennstoffinhomogenitäten zu Verbrennungsinstabilitäten, die zum einen durch Temperaturspitzen wieder zu erhöhten Schadstoffemissionen, zum anderen aber auch durch Anregung thermoakustischer Schwingungen zu einer hohen thermischen und mechanischen Beanspruchung des Turbinenaggregats führen. Im Kraftwerksbetrieb, wie auch beim Betrieb von Triebwerksturbinen bei Flugzeugen, kann eine mechanische Überbeanspruchung zu katastrophalen Folgen führen. Die Simulation kann auch hier helfen, Wirkketten abhängiger physikalischer und chemischer Prozesse zu entschlüsseln und Kontrollmöglichkeiten aufzuzeigen. Um dies jedoch zu ermöglichen, sind umfassende Experimente zur Datengewinnung und Validierung der numerischen Ergebnisse notwendig. Zu diesem Zweck wurden die Flammeneigenschaften in einem Gasturbinenbrenner unter verschiedenen turbinennahen Betriebsbedingungen untersucht, wozu auch instationäre Betriebsbedingungen gehörten, bei denen Verbrennungsinstabilitäten auftraten.

Die Ergebnisse der Untersuchungen aus den beiden Projekten sind in dieser Arbeit in zwei getrennten Kapiteln zusammengefasst.

In Kapitel IV wird das Experiment zur Bestimmung von Gradienten und deren Korrelationen beschrieben, das in Zusammenarbeit mit dem ITV Stuttgart durchgeführt wurde. Dazu wurden in einer gekreuzten Anordnung von Messebenen mittels laserinduzierter Fluoreszenz durch Anregung des prädissoziierenden $A-X(3,0)$ -Übergangs von OH bei 248 nm Konzentrationsverteilungen gemessen. Entlang der Schnittlinie der beiden Ebenen können mit relativ hoher Auflösung Konzentrationsgradienten berechnet werden, da zu jedem Punkt auf dieser Geraden auch Daten der Umgebung in allen drei Raumrichtungen vorhanden sind. Kombiniert wurde dieser Messaufbau mit simultanen 1D-Raman-Messungen, deren Messbereich mit der Schnittlinie der LIF-Messebenen überlappte und die erlauben, Temperatur- und Majoritätenspezieskonzentrationen für den untersuchten Bereich zu berechnen. Für die Quantifizierung der OH-Messungen fand ein Verfahren Anwendung, das sich auf eine kombinierte Anwendung von Kalibrationsmessungen und simulierten Korrelationen von OH-LIF-Intensitäten und OH-Konzentrationen stützt (Kap. IV.3.2).

Es gelang für verschiedene Einzelmessungen, OH-Konzentrationsprofile mit den aus den Raman-Messungen gewonnenen Temperatur- und Spezieskonzentrationsprofilen zu überlagern (Kap. IV.4.1). Aus den 3D-Datensätzen der OH-Konzentrationsverteilungen wurden für verschiedene Höhen über dem Brenneraustritt OH-Gradienten-Konzentrations-Korrelationen erstellt, welche zeigen, dass Datenpunkte abhängig von ihrer Herkunft in der Flamme klar einzelnen Bereichen im Diagramm zugeordnet werden können (Kap. IV.4.2). Im Vergleich mit der Simulation zeigt sich jedoch, dass abhängig vom untersuchten Objekt und den nötigen Bildverarbeitungsschritten die örtliche Auflösung, die zur quantitativen Untersuchung der auftretenden Gradienten notwendig wäre, unter den gegebenen Bedingungen nicht erreichbar war. Die Daten erlaubten dennoch weitere Untersuchungen bezüglich der Bestimmung von Gradienten im Raum im Vergleich zu einer Bestimmung in nur zwei Dimensionen. Bei einer reinen zweidimensionalen Bestimmung von Gradienten wird lediglich die Projektion des realen Gradienten auf die Messebene erhalten. Abhängig von den Bedingungen in der Flamme spielt dann die relative Ausrichtung der Messebene, welche eine gewisse Vorzugsrichtung bezüglich der Flammenfront vorgibt, eine entscheidende Rolle. Dies konnte im beschriebenen Experiment anhand des Vergleiches des realen Gradienten mit seiner Projektion auf die Messebene an verschiedenen Punkten in der Flamme und der Untersuchung der räumlichen Ausrichtung der Gradienten, in Form der 3D-Darstellung der Normalenvektoren der Flammenfrontebenen, gezeigt werden. Eine quantitative Abschätzung anhand der gemessenen Daten zeigt, dass die im

zweidimensionalen Raum bestimmten Gradienten in ungünstigen Fällen bis zu 30% vom realen Gradienten abweichen können (Kap. IV.4.3).

In Kapitel V wiederum werden OH-LIF-Messungen zur Bestimmung der Flammenfront in unterschiedlichen stationären Flammen, sowie zur Untersuchung von Verbrennungsinstabilitäten zweier instationärer Flammen an einem Modellbrenner einer Gasturbine herangezogen. Die Messungen stellen einen Teilbereich einer umfangreichen Untersuchung der Wirkketten von Verbrennungsinstabilitäten in einem Modell-Turbinenbrenner unter turbinennahen Betriebsbedingungen dar. In Zusammenarbeit mit dem ITS Karlsruhe wurden einerseits im Standardbetrieb übliche stationäre Flammen mit und ohne Brennstoffvormischung und Pilotierung mittels laserinduzierter Fluoreszenz von OH durch Anregung des $A-X(0,0)$ -Überganges bei 308 nm untersucht. Andererseits wurden aber auch die Betriebsparameter des Brenners so weit verändert, dass auch zwei instationäre Flammen mit schwachen bzw. starken Oszillationen untersucht werden konnten.

Im Falle der stationären Messungen konnten, vor allem durch die statistische Auswertung der Flammenfronten der untersuchten Flammentypen, charakteristische Merkmale und Unterschiede der verschiedenen Betriebsmodi anschaulich sichtbar gemacht werden (Kap. V.4.1.4). Ein Vergleich mit Simulationen, durchgeführt am CERFACS in Toulouse, ergab sehr gute Übereinstimmungen mit den Messungen (Kap. V.4.1.5).

Im Falle der instationären vorgemischten Flammen gelang es ebenfalls, Beobachtungen aus Strömungsmessungen, wie das Pulsieren der Flamme, in phasenaufgelösten zweidimensionalen OH-LIF-Messungen zu bestätigen und detailliert abzubilden. Als Auslöser konnten Strömungsfuktuationen in der Brennerpassage identifiziert werden, die zur Bildung von Kraftstoffinhomogenitäten und einer fluktuierenden Wärmefreisetzung in der Reaktionszone führen. Im Falle der stark oszillierenden Vormischflamme konnte sogar das nahezu vollständige Zusammenbrechen der Drallstabilisierung nachgewiesen werden, das zu einem Beinahe-Verlöschen der Flamme führt (Kap. V.4.2.2). Es ist somit erfolgreich gelungen ein umfangreiches Repertoire von Messmethoden zur Charakterisierung eines Modell-Gasturbinenbrenners unter turbinennahen Bedingungen mit weiteren bildgebenden Messungen zu ergänzen und die Resultate aus anderen Messverfahren und der Simulation zu validieren und zu veranschaulichen. Dies dient dem Verständnis der Wirkprozesse im Turbinenbetrieb und soll der Weiterentwicklung dienen, um den Verbrennungsprozess zu optimieren, Materialbelastungen zu minimieren und Gefährdungen im Betrieb auszuschließen.

Literaturverzeichnis

1. Warnatz, J., U. Maas, und R.W. Dibble, *Combustion*. 2001, Springer: Berlin ; Heidelberg, New York. p. 299 S.
2. Peters, N., *Turbulent combustion*, in *Cambridge monographs on mechanics*. 2000, Cambridge University Press: Cambridge [u.a.]. p. XVI, 304 S.
3. Atkins, P.W., *Physikalische Chemie/[Hauptbd.]*. 3., korr. Aufl., 1. Nachdr. Vol. [Hauptbd.]. 2004, Wiley-VCH: Weinheim, Berlin. 1106 S.
4. Herzberg, G., *Spectra of Diatomic Molecules*. 2nd. Ed. Molecular Spectra and Molecular Structure. Vol. I. 1950, Krieger Publishing: Melbourne, Florida U.S.A. 678 S.
5. Haken, H. und H.C. Wolf, *Molekülphysik und Quantenchemie*, in *Springer-Lehrbuch*. 2003, Springer: Berlin [u.a.]. p. XVIII, 528 S.
6. Eckbreth, A.C., *Laser diagnostics for combustion temperature and species*. 2nd. 1995, Gordon & Breach: Amsterdam.
7. Demtröder, W., *Laser spectroscopy*. 1998, Springer: Berlin ; Heidelberg [u.a.]. p. XVII, 924 S.
8. Kohse-Höinghaus, K. und J.B. Jeffries, eds. *Applied Combustion Diagnostics*. 2002, Taylor and Francis: New York. 700.
9. Wolfrum, J., *Lasers in combustion: from basic theory to practical devices*. Proceedings of the Combustion Institute, 1998. **27**(1): p. 1-41.
10. Sick, V., A. Arnold, E. Diessel, T. Dreier, W. Ketterle, B. Lange, J. Wolfrum, K.U. Thiele, F. Behrendt, und J. Warnatz, *Two-dimensional laser diagnostics and modeling of counterflow diffusion flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 1991. **23**: p. 495-501.
11. Sick, V., *Einsatz hochauflösender Laserspektroskopie zur quantitativen Analyse von Gegenstrom-Diffusionsflammen*, Dissertation, 1992, Universität Heidelberg.
12. Roedel, W., *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. 3., überarb. u. aktualisierte Aufl. 2000, Springer: Berlin, Heidelberg, New York. 498 S.
13. Zierep, J., *Grundzüge der Strömungslehre*. 6., neubearb. Aufl. 1997, Springer: Berlin, Heidelberg, New York. 174 S.
14. Bray, K.N.C. und N. Peters, *Laminar flamelets in turbulent flames*, in *Turbulent Reacting Flows*, P.A. Libby und F.A. Williams, Editors. 1994, Academic Press, London, UK. p. 63-113.
15. Peters, N., *Laminar diffusion flamelet models in non-premixed turbulent combustion*. Progress in Energy and Combustion Science, 1984. **10**(3): p. 319-39.
16. Dinkelacker, F., *Entwicklung und Anwendung multidimensionaler Laserlichtschnitt-Techniken zur simultanen Geschwindigkeits-, Konzentrations- und Temperaturfeldmessung in hochturbulenten Vormischflammen*, Dissertation, 1993, Universität Heidelberg.
17. Laidler, K.J., *Chemical kinetics*. 1987, Harper & Row: New York. p. XI, 531 S.
18. Williams, F.A., *Combustion theory*, in *Combustion science and engineering series*. 1988, Addison Wesley [u.a.]: Redwood City, Calif. [u.a.]. p. XXIII, 680 S.
19. Barlow, R.S., R.W. Dibble, J.Y. Chen, und R.P. Lucht, *Effect of Damkoehler number on superequilibrium hydroxyl radical concentration in turbulent nonpremixed jet flames*. Combustion and Flame, 1990. **82**(3-4): p. 235-51.

-
20. Correa, S.M. und A. Gulati, *Non-premixed turbulent carbon monoxide/hydrogen flames at local extinction conditions*. Proceedings of the Combustion Institute, 1989. **22**: p. 599-606.
 21. Huber, K.-P. und G. Herzberg, *Constants of diatomic molecules* Molecular Spectra and Molecular Structure. Vol. IV. 1979, Van Nostrand Company: New York. 716 S.
 22. Luque, J. und D.R. Crosley, *LIFBASE: Database and Spectral Simulation Program (Version 1.5)*, SRI International Report MP 99-009. 1999:
 23. Dieke, G.H. und H.M. Crosswhite, *The ultraviolet bands of OH. Fundamental data*. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 1962. **2**: p. 97-199.
 24. Crosley, D.R., *Semiquantitative laser-induced fluorescence in flames*. Combustion and Flame, 1989. **78**(1): p. 153-67.
 25. Wolfrum, J., *How to attack complex gas-phase combustion systems*. Combustion and Flame, 1989. **78**(1): p. 13-41.
 26. Arnold, A., *Entwicklung von abstimmbaren Mehrfrequenzen-Excimer-Lasern zur Bestimmung von Konzentrations- und Temperaturfeldern in turbulenten technischen Flammen*, Dissertation, 1992, Universität Heidelberg.
 27. Andresen, P., A. Bath, W. Groeger, H.W. Luelf, G. Meijer, und J.J. Ter Meulen, *Laser-induced fluorescence with tunable excimer lasers as a possible method for instantaneous temperature field measurements at high pressures: checks with an atmospheric flame*. Applied Optics, 1988. **27**(2): p. 365-78.
 28. Kazenwadel, J., *Anwendung laserdiagnostischer Meßverfahren zur Charakterisierung eingeschlossener, nicht vorgemischter Drallflammen*, Dissertation, 2000, Universität Heidelberg.
 29. Andresen, P., G. Meijer, H. Schlueter, H. Voges, A. Koch, W. Hentschel, W. Oppermann, und E. Rothe, *Fluorescence imaging inside an internal combustion engine using tunable excimer lasers*. Applied Optics, 1990. **29**(16): p. 2392-404.
 30. Gray, J.A. und R.L. Farrow, *Predissociation lifetimes of hydroxyl $A^2\Sigma^+$ ($v' = 3$) obtained from optical-optical double-resonance line width measurements*. Journal of Chemical Physics, 1991. **95**(10): p. 7054-60.
 31. Kohse-Höinghaus, K., *Quantitative laser-induced fluorescence: some recent developments in combustion diagnostics*. Applied Physics B: Photophysics and Laser Chemistry, 1990. **B50**(6): p. 455-61.
 32. Cheng, T.S., J.A. Wehrmeyer, und R.W. Pitz, *Simultaneous temperature and multispecies measurement in a lifted hydrogen diffusion flame*. Combustion and Flame, 1992. **91**(3-4): p. 323-45.
 33. Battles, B.E. und R.K. Hanson, *Laser-induced fluorescence measurements of NO and OH mole fraction in fuel-lean, high-pressure (101-atm) methane flames: fluorescence modeling and experimental validation*. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 1995. **54**(3): p. 521-37.
 34. Jeffries, J.B., K. Kohse-Höinghaus, G.P. Smith, R.A. Copeland, und D.R. Crosley, *Rotational-level-dependent quenching of hydroxyl ($A^2\Sigma^+$) at flame temperatures*. Chemical Physics Letters, 1988. **152**(2-3): p. 160-6.
 35. Copeland, R.A., M.J. Dyer, und D.R. Crosley, *Rotational-level-dependent quenching of $A^2\Sigma^+$ hydroxyl and hydroxyl-d*. Journal of Chemical Physics, 1985. **82**(9): p. 4022-32.
 36. Crosley, D.R., *Rotational and translation effects in collisions of electronically excited diatomic hydrides*. Journal of Physical Chemistry, 1989. **93**(17): p. 6273-82.
 37. Hemming, B.L., D.R. Crosley, J.E. Harrington, und V. Sick, *Collisional quenching of high rotational levels in $A^2\Sigma^+$ OH*. Journal of Chemical Physics, 2001. **115**(7): p. 3099-3104.

-
38. Hemming, B.L. und D.R. Crosley, *Rotational-Level Dependence of OH $A^2\Sigma^+$ Quenching at 242 and 196 K*. Journal of Physical Chemistry A, 2002. **106**(39): p. 8992-8995.
 39. Fairchild, P.W., G.P. Smith, und D.R. Crosley, *Collisional quenching of $A^2\Sigma^+$ hydroxyl at elevated temperatures*. Journal of Chemical Physics, 1983. **79**(4): p. 1795-807.
 40. Paul, P.H., C.D. Carter, J.A. Gray, und J.L. Durant Jr., *Correlations for the OH $A^2\Sigma^+$ ($v'=0$) Electronic Quenching Cross-section*. Sandia Report SAND94-8244 UC-1423, Sandia National Laboratory, Livermore, CA, 1994.
 41. Paul, P.H., *A model for temperature-dependent collisional quenching of OH $A^2\Sigma^+$* . Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 1994. **51**(3): p. 511-24.
 42. Tamura, M., P.A. Berg, J.E. Harrington, J. Luque, J.B. Jeffries, G.P. Smith, und D.R. Crosley, *Collisional quenching of CH(A), OH(A), and NO(A) in low pressure hydrocarbon flames*. Combustion and Flame, 1998. **114**(3/4): p. 502-514.
 43. Luque, J. und D.R. Crosley, *Transition probabilities in the $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi$ electronic system of OH*. Journal of Chemical Physics, 1998. **109**(2): p. 439-448.
 44. Paul, P.H., I. Van Cruyningen, R.K. Hanson, und G. Kychakoff, *High-resolution digital flowfield imaging of jets*. Experiments in Fluids, 1990. **9**(5): p. 241-51.
 45. Kazenwadel, J., W. Koban, T. Kunzelmann, und C. Schulz, *Fluorescence imaging of natural gas / air mixing without tracers added*. Chemical Physics Letters, 2001. **345**: p. 259-264.
 46. Namazian, M., R.W. Schefer, und J. Kelly, *Scalar dissipation measurements in the developing region of a jet*. Combustion and Flame, 1988. **74**(2): p. 147-60.
 47. Buch, K.A., W.J.A. Dahm, R.W. Dibble, und R.S. Barlow, *Structure of equilibrium reaction rate fields in turbulent jet diffusion flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 1992. **24**: p. 295-301.
 48. Feikema, D.A., D. Everest, und J.F. Driscoll, *Images of dissipation layers to quantify mixing within a turbulent jet*. AIAA Journal, 1996. **34**(12): p. 2531-2538.
 49. Kalt, P.A.M., Y.M. Al-Abdeli, A.R. Masri, und R.S. Barlow, *Swirling turbulent non-premixed flames of methane: flow field and compositional structure*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**(2): p. 1913-1919.
 50. Nau, M., A. Woelfert, U. Maas, und J. Warnatz, *Application of a combined PDF/finite volume scheme on turbulent methane diffusion flames*. Proceedings of the International Symposium on Transport Phenomena in Combustion, 1996. **8**(2): p. 986-994.
 51. Pope, S.B., *Computations of turbulent combustion: progress and challenges*. Proceedings of the Combustion Institute, 1991. **23**: p. 591-612.
 52. Borghi, R., *Turbulent combustion modeling*. Progress in Energy and Combustion Science, 1988. **14**(4): p. 245-92.
 53. Peters, N., *Laminar flamelet concepts in turbulent combustion*. Proceedings of the Combustion Institute, 1988. **21**: p. 1231-50.
 54. Reynolds, W.C., *The potential and limitations of direct and large eddy simulation*, in *Whither Turbulence? Turbulence at the cross-roads, Lecture Notes in Physics*, J.L. Lumley, Editor. 1989, Springer: Berlin, Heidelberg, New York. p. 313.
 55. Masri, A.R., R.W. Dibble, und R.S. Barlow, *The structure of turbulent non-premixed flames revealed by Raman-Rayleigh-LIF measurements*. Progress in Energy and Combustion Science, 1996. **22**(4): p. 307-362.
 56. Thévenin, D., O. Gicquel, J. De Charentenay, R. Hilbert, und D. Veynante, *Two- versus three-dimensional direct simulations of turbulent methane flame kernels using realistic chemistry*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**(2): p. 2031-2039.

-
57. Yip, B., D.C. Fourquette, und M.B. Long, *Three-dimensional gas concentration and gradient measurements in a photoacoustically perturbed jet*. Applied Optics, 1986. **25**(21): p. 3919-3923.
 58. Yip, B. und M.B. Long, *Instantaneous planar measurement of the complete three-dimensional scalar gradient in a turbulent jet*. Optics Letters, 1986. **11**(2): p. 64-66.
 59. Su, L.K. und N.T. Clemens, *Planar measurements of the full three-dimensional scalar dissipation rate in gas-phase turbulent flows*. Experiments in Fluids, 1999. **27**(6): p. 507-521.
 60. Chen, Y.-C. und R.W. Bilger, *Experimental investigation of three-dimensional flame-front structure in premixed turbulent combustion-I: hydrocarbon/air Bunsen flames*. Combustion and Flame, 2002. **131**(4): p. 400-435.
 61. Chen, Y.-C. und R.W. Bilger, *Experimental investigation of three-dimensional flame-front structure in premixed turbulent combustion II. Lean hydrogen/air Bunsen flames*. Combustion and Flame, 2004. **138**(1/2): p. 155-174.
 62. Landefeld, T., A. Kremer, E.P. Hassel, J. Janicka, T. Schafer, J. Kazenwadel, C. Schulz, und J. Wolfrum, *Laser-diagnostic and numerical study of strongly swirling natural gas flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 1998. **27**(1): p. 1023-1029.
 63. Frank, J.H., K.M. Lyons, und M.B. Long, *Technique for three-dimensional measurements of the time development of turbulent flames*. Optics Letters, 1991. **16**(12): p. 958-60.
 64. Yip, B., J.K. Lam, M. Winter, und M.B. Long, *Time-Resolved Three-Dimensional Concentration Measurements in a Gas Jet*. Science, New Series, 1987. **235**(4793): p. 1209-1211.
 65. Yip, B., R.L. Schmitt, und M.B. Long, *Instantaneous three-dimensional concentration measurements in turbulent jets and flames*. Optics Letters, 1988. **13**(2): p. 96-8.
 66. Long, M.B. und B. Yip, *Measurement of three-dimensional concentrations in turbulent jets and flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 1989. **22**: p. 701-9.
 67. Long, M.B., K. Lyons, und J. Frank, *Multi-dimensional laser diagnostics for flame studies*. Chemical and Physical Processes in Combustion, 1990: p. A1-A9.
 68. Nygren, J., J. Hult, M. Richter, M. Aldén, M. Christensen, A. Hultqvist, und B. Johansson, *Three-dimensional laser induced fluorescence of fuel distributions in an HCCI engine*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**: p. 679-685.
 69. Dahm, W.J.A., K.B. Southerland, und K.A. Buch, *Direct, high resolution, four-dimensional measurements of the fine scale structure of Sc_{mchgt} . I molecular mixing in turbulent flows*. Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, 1991. **3**(5, Pt. 2): p. 1115-27.
 70. Dahm, W.J.A., L.K. Su, und K.B. Southerland, *A scalar imaging velocimetry technique for fully resolved four-dimensional vector velocity field measurements in turbulent flows*. Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, 1992. **4**(10): p. 2191-2206.
 71. Van Vliet, E., S.M. Van Bergen, J.J. Derksen, L.M. Portela, und H.E.A. Van Den Akker, *Time-resolved, 3D, laser-induced fluorescence measurements of fine-structure passive scalar mixing in a tubular reactor*. Experiments in Fluids, 2004. **37**(1): p. 1-21.
 72. Knaus, D.A., F.C. Gouldin, P.C. Hinze, und P.C. Miles, *Measurement of instantaneous flamelet surface normals and the burning rate in a SI engine*. SAE Technical Paper Series No. 1999-01-3543, 1999.
 73. Bingham, D.C., F.C. Gouldin, und D.A. Knaus, *Crossed-plane laser tomography: direct measurement of flamelet normal and surface density*. Chemical and Physical Processes in Combustion, 1997: p. 375-378.
 74. Knaus, D.A., F.C. Gouldin, P.C. Hinze, und P.C. Miles, *Flamelet orientations and the burning rate integral of SI engine flames*. Chemical and Physical Processes in Combustion, 1999: p. 411-414.

-
75. Knaus, D.A. und F.C. Gouldin, *Measurements of flamelet orientations in premixed flames with positive and negative Markstein numbers*. Proceedings of the Combustion Institute, 2000. **28**(1): p. 367-373.
 76. Knaus, D.A., F.C. Gouldin, und D.C. Bingham, *Assessment of crossed-plane tomography for flamelet surface normal measurements*. Combustion Science and Technology, 2002. **174**(1): p. 101-134.
 77. Sattler, S.S., F.C. Gouldin, und N.T. Boertlein. *Combined crossed-plane imaging and stereo-particle image velocimetry*. in *Third Joint Meeting of the U.S. Sections of the Combustion Institute*. 2003. Chicago, IL.
 78. Knaus, D.A., S.S. Sattler, und F.C. Gouldin, *Three-dimensional temperature gradients in premixed turbulent flamelets via crossed-plane Rayleigh imaging*. Combustion and Flame, 2005. **141**(3): p. 253-270.
 79. Karpetis, A.N. und R.S. Barlow, *Measurements of scalar dissipation in a turbulent piloted methane/air jet flame*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**(2): p. 1929-1936.
 80. Karpetis, A.N., T.B. Settersten, R.W. Schefer, und R.S. Barlow, *Laser imaging system for determination of three-dimensional scalar gradients in turbulent flames*. Optics Letters, 2004. **29**(4): p. 355-357.
 81. Karpetis, A.N. und R.S. Barlow. *Measurements of flame orientation and scalar dissipation in turbulent hydrocarbon flames*. in *Third Joint Meeting of the U.S. Sections of the Combustion Institute*. 2003. Chicago, IL.
 82. Zimmermann, F., *Entwicklung einer Methode zur in-situ Messung dreidimensionaler Gradienten in turbulenten Flammen und Strömungen*, Diplomarbeit, 2001, Universität Heidelberg.
 83. Hoffmann, A., F. Zimmermann, und C. Schulz. *Instantaneous three-dimensional visualization of concentration distributions in turbulent flows with a single laser*. in *First International Conference on Optical and Laser Diagnostics*. 2002. City University, London, UK.
 84. Hoffmann, A., F. Zimmermann, H. Scharr, S. Kroemker, und C. Schulz, *Instantaneous three-dimensional visualization of concentration distributions in turbulent flows with crossed-plane laser-induced fluorescence imaging*. Applied Physics B: Lasers and Optics, 2004. **80**(1): p. 125-131.
 85. Dartu, C. und S. Krömker, *Vrend Tutorial, IWR preprint 2001-18*. 2001, IWR, Universität Heidelberg.
 86. Dartu, C., *Visualization of volumetric datasets*, Dissertation, 2001, Universität Heidelberg.
 87. Bender, R., B. Steiner, D. Schmidt, R. Schießl, T. Dreier, und U. Maas. *Experimentelle Untersuchung und pdf-Simulation turbulenter Vormischflammen*. in *16. TECFLAM Seminar*. 2002.
 88. Nguyen, Q.V. und P.H. Paul, *Photochemical effects of KrF excimer excitation in laser-induced fluorescence measurements of OH in combustion environments*. Applied Physics B: Lasers and Optics, 2001. **72**(4): p. 497-505.
 89. Doherty, P.M. und D.R. Crosley, *Polarization of laser-induced fluorescence in hydroxyl in an atmospheric-pressure flame*. Applied Optics, 1984. **23**(5): p. 713-21.
 90. Lucht, R.P., S. Roy, und T.A. Reichardt, *Calculation of radiative transition rates for polarized laser radiation*. Progress in Energy and Combustion Science, 2003. **29**(2): p. 115-137.
 91. Brinkman, E.A. und D.R. Crosley, *Collisional Depolarization in Laser-Induced Fluorescence of OH*. Journal of Physical Chemistry A, 2004. **108**(39): p. 8084-8088.

-
92. Brockhinke, A., U. Lenhard, A. Buelter, und K. Kohse-Hoeinghaus, *Energy transfer in the OH A²Σ⁺ state: The role of polarization and of multi-quantum energy transfer*. Physical Chemistry Chemical Physics, 2005. **7**(5): p. 874-881.
 93. Schießl, R., U. Maas, A. Hoffmann, J. Wolfrum, und C. Schulz, *Method for absolute OH-concentration measurements in premixed flames by LIF and numerical simulations*. Applied Physics B: Lasers and Optics, 2004. **79**(6): p. 759-766.
 94. Prucker, S., W. Meier, und W. Stricker, *A flat flame burner as calibration source for combustion research: temperatures and species concentrations of premixed H₂/air flames*. Review of Scientific Instruments, 1994. **65**(9): p. 2908-11.
 95. Kaiser, E.W., K. Marko, D. Klick, L. Rimai, C.C. Wang, B. Shirinzadeh, und D. Zhou, *Measurement of OH density profiles in atmospheric-pressure propane-air flames*. Combustion Science and Technology, 1986. **50**(1-3): p. 163-83.
 96. Jähne, B., *Digital Image Processing*. 6. korrigierte und erweiterte Auflage. 2005, Springer: Berlin ; Heidelberg, New York. 608 S.
 97. Scharr, H., *Optimale Operatoren in der Digitalen Bildverarbeitung*, Dissertation, 2000, Universität Heidelberg.
 98. Hoffmann, A., C. Schulz, J. Ruckwied, D. Malcherek, T. Dreier, R. Schießl, und U. Maas. *Three-dimensional measurement of OH-concentration gradients in a turbulent flame by simultaneous laser induced fluorescence and Raman scattering*. in *European Combustion Meeting*. 2003. Orléans, France.
 99. Hassel, E.P., *Ultraviolet Raman-scattering measurements in flames by the use of a narrow-band xenon chloride excimer laser*. Applied Optics, 1993. **32**(21): p. 4058-65.
 100. Nowak, U. und L. Weimann, *A Family of Newton Codes for Systems of Highly Nonlinear Equations*. 1991: Konrad-Zuse-Zentrum für Informationstechnik Berlin, Technical Report TR 91-10.
 101. Zeldovich, J., *The Oxidation of Nitrogen in Combustion and Explosions*. Acta Physicochimica USSR, 1946. **21**(4): p. 577-628.
 102. Dalla Betta, R.A., *Catalytic combustion gas turbine systems: the preferred technology for low emissions electric power production and co-generation*. Catalysis Today, 1997. **35**(1-2): p. 129-135.
 103. Forzatti, P. und G. Groppi, *Catalytic combustion for the production of energy*. Catalysis Today, 1999. **54**(1): p. 165-180.
 104. Giauque, A., L. Selle, T. Poinot, H. Büchner, P. Kaufmann, und W. Krebs, *System identification of a large scale swirled premixed combustor using LES and comparison to measurements*. 2004: CERFACS, Toulouse (Frankreich), Technical Report TR/CFD/04/6.
 105. Mueller, C.J., J.F. Driscoll, D.L. Reuss, und M.C. Drake, *Effects of unsteady stretch on the strength of a freely-propagating flame wrinkled by a vortex*. Proceedings of the Combustion Institute, 1996. **26**(1): p. 347-355.
 106. Mungal, M.G., L.M. Lourenco, und A. Krothapalli, *Instantaneous velocity measurements in laminar and turbulent premixed flames using online PIV*. Combustion Science and Technology, 1995. **106**(4-6): p. 239-265.
 107. Gaydon, A.G. und H.G. Wolfhard, *Flames: Their Structure, Radiation, and Temperature*. 4th Ed. 1979. 449 pp.
 108. Gaydon, A.G., *The Spectroscopy of Flames*. 2nd ed. 1974. 412 pp.
 109. Smith, G.P., J. Luque, C. Park, J.B. Jeffries, und D.R. Crosley, *Low pressure flame determinations of rate constants for OH(A) and CH(A) chemiluminescence*. Combustion and Flame, 2002. **131**(1-2): p. 59-69.

-
110. Smith, G.P., C. Park, J. Schneiderman, und J. Luque, *C₂ Swan band laser-induced fluorescence and chemiluminescence in low-pressure hydrocarbon flames*. Combustion and Flame, 2005. **141**(1/2): p. 66-77.
 111. Samaniego, J.M., F.N. Egolfopoulos, und C.T. Bowman, *CO₂* chemiluminescence in premixed flames*. Combustion Science and Technology, 1995. **109**(1-6): p. 183-203.
 112. Najm, H.N., P.H. Paul, C.J. Mueller, und P.S. Wyckoff, *On the adequacy of certain experimental observables as measurements of flame burning rate*. Combustion and Flame, 1998. **113**(3): p. 312-332.
 113. Najm, H.N., O.M. Knio, P.H. Paul, und P.S. Wyckoff, *A study of flame observables in premixed methane-air flames*. Combustion Science and Technology, 1998. **140**(1-6): p. 369-403.
 114. Paul, P.H. und H.N. Najm, *Planar laser-induced fluorescence imaging of flame heat release rate*. Proceedings of the Combustion Institute, 1998. **27**(1): p. 43-50.
 115. Schildmacher, K.-U., *Experimentelle Charakterisierung der Instabilitäten vorgemischter Flammen in Gasturbinen-Brennkammern*. Vol. 26/2005. 2005, Logos Verlag: Berlin. 160 S.
 116. Selle, L., *Simulation aux grandes échelles des interactions flamme / acoustique dans un écoulement vrillé*, Dissertation, 2004, CERFACS: Toulouse (Frankreich).
 117. Kaiser, S.A., J.H. Frank, und M.B. Long. *Use of Rayleigh imaging and ray tracing to correct for beam-steering effects in turbulent flames*. in *Fourth Joint Meeting of the U.S. Sections of the Combustion Institute: Western States, Central States, Eastern States*. 2005. Philadelphia, PA, United States.
 118. Kaiser, S.A., J.H. Frank, und M.B. Long, *Use of Rayleigh imaging and ray tracing to correct for beam-steering effects in turbulent flames*. Applied Optics, 2005. **44**(31): p. 6557-64.
 119. Selle, L., G. Lartigue, T. Poinsot, R. Koch, K.U. Schildmacher, W. Krebs, B. Prade, P. Kaufmann, und D. Veynante, *Compressible large eddy simulation of turbulent combustion in complex geometry on unstructured meshes*. Combustion and Flame, 2004. **137**(4): p. 489-505.
 120. Schildmacher, K.-U., A. Hoffmann, L. Selle, R. Koch, C. Schulz, H.-J. Bauer, T. Poinsot, und W. Krebs, *Unsteady Flame and Flow Field Interaction of a Premixed Model Gas Turbine Burner*. Proceedings of the Combustion Institute, 2006. **31**(accepted for presentation).
 121. Heckl, M. und H.A. Müller, *Taschenbuch der Technischen Akustik*. 1994, Springer Verlag: Berlin, Heidelberg, New York.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt:

Den Herren Professoren Dr. Jürgen Wolfrum und Dr. Christof Schulz, die mir die Durchführung dieser interessanten und vielseitigen wissenschaftlichen Aufgabe ermöglicht haben und für ihr unermüdliches Interesse an dieser Arbeit.

Ganz besonders möchte ich Herrn Prof. Dr. Christof Schulz für seine kompetente Betreuung danken. Er gestaltete diese Arbeit durch zahlreiche Anregungen und Diskussionen mit und war auch bei der Korrektur ein hilfreicher Ratgeber.

Allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Schulz (Arbeitskreis Prof. Dr. Wolfrum) danke ich für ihre Kollegialität und die gute Arbeitsatmosphäre.

Besonderer Dank geht an Herrn Dipl.-Phys. Frank Zimmermann, der im Laufe seiner Diplomarbeit einen Teil der Vorarbeit im Sektor 3D-Bildverarbeitung leistete. Sowie an Frau Dr. Nicole Graf, die bei der Durchführung der Turbinenbrennermessungen beteiligt war.

Im Rahmen der Kooperation mit dem ITV Stuttgart geht mein Dank an:

Herrn Prof. Dr. Ulrich Maas für die Kooperation und Bereitstellung der Brenneranlage.

Herrn Dipl.-Phys. Dietmar Malcherek für seine unermüdliche Mitarbeit bei den Messungen und für die Durchführung der Raman-Messungen.

Herrn Dr. Thomas Dreier, der zu Beginn des Projektes als Kontaktmann am ITV vor allem in der Planungs-, Aufbau- und Messphase stets mit Rat und Tat zur Seite stand.

Und ganz besonders Herrn Dr. Robert Schießl, der die Auswertungen der Raman-Daten übernahm und durch eine Vielzahl von Simulationen für Feedback von der Simulationsseite sorgte. Mit seinem Ansatz zur Quantifizierung des OH-Signals mittels simulierter LIF-[OH]-Korrelationen hat er einen wesentlichen Teil zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen und stand auch häufig bei theoretischen Fragen mit Ideen und Erklärungen zur Seite.

Der Dank für die finanzielle Unterstützung des Projektes geht an die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) im Rahmen des Projektes DFG-WO175/34.

Im Rahmen der Kooperation mit dem ITS Karlsruhe geht mein Dank an:

Herrn Prof. Dr.-Ing. Hans-Jörg Bauer für die Kooperation und Bereitstellung der technischen Anlagen.

Herrn Dr.-Ing. Rainer Koch für die Koordination des Projekts, sowie für seine Anregungen und die Durchsicht der Arbeit.

Herrn Dr.-Ing. Kai-Uwe Schildmacher für die Zusammenarbeit und die Betreuung der Brenneranlage, sowie für die Koordination und den Einsatz bei der Publikation der Ergebnisse.

Für die Bereitstellung der Vergleichsergebnisse aus der Simulation geht mein Dank an die Herren Prof. Dr. Thierry Poinot, Dr. Laurent Selle und Alexis Giauque vom CERFACS, Toulouse, Frankreich.

Für die Finanzierung des Projektes geht der Dank an Siemens Power Generation, Mülheim/Ruhr.

Danksagung

Für den Bereich der Bildverarbeitung geht mein Dank an Dr. Hanno Scharr (ehem. IWR Heidelberg), als Entwickler des hier erwähnten Diffusionsalgorithmus und an Dr. Susanne Krömker (IWR Heidelberg) für die Bereitstellung des 3D-Renderprogramms vrend[©]2.1.

Dank geht auch an die Damen und Herren der Verwaltung und der Werkstätten, die mit stets unbürokratischer Hilfsbereitschaft, Sachkenntnis und handwerklichem Geschick ein erfolgreiches Arbeiten erst möglich machten, sowie an alle Kolleginnen und Kollegen, die in alltäglichen Situationen mit ihrer Unterstützung in jeder Hinsicht zur Seite standen und bislang unerwähnt blieben.

Ganz besonderer Dank geht an meine Familie für ihre Unterstützung während des Studiums und ihren festen Glauben an das Gelingen dieser Arbeit und an meine ehemaligen Studienkollegen und engen Freunde, ohne die diese Arbeit sicher nicht möglich gewesen wäre.

Erklärung:

Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Dissertation selbst verfasst habe und mich keiner anderen als der von mir ausdrücklich bezeichneten Quellen und Hilfsmittel bedient habe.

Heidelberg, den 18.05.2006

(Axel Hoffmann)