

Musterbildung in Diffusionsflammen

Visualisierung mit der holografischen real-time

Durchlichtinterferometrie

12. Winterseminar auf dem Zeinisjoch/Tirol vom 16.03. bis 23.03.1996:
Dynamik in Reaktoren und Reaktornetzwerken

Prof. Dr. Axel Schönbacher

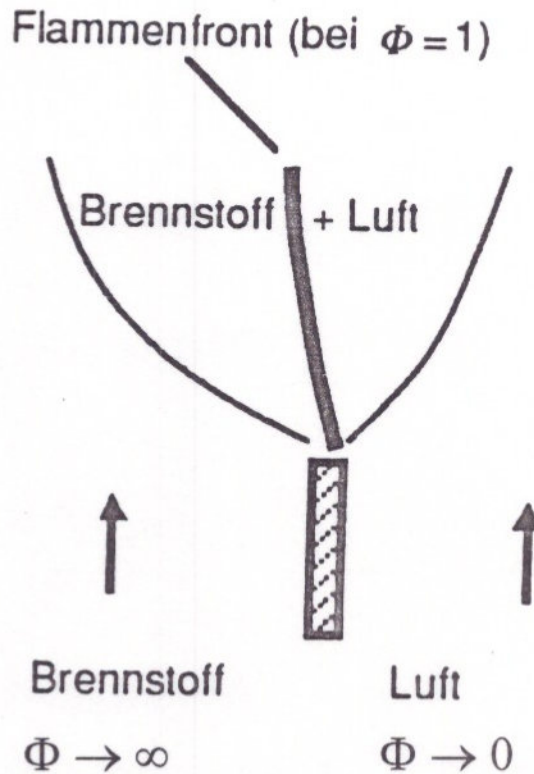
Lehrstuhl für Technische Chemie

Gerhard-Mercator-Universität Duisburg

- 1.0 Einführung: Charakterisierung der untersuchten Diffusionsflammen**
- 2.0 Experimentelles**
- 3.0 Visualisierung raum-zeitlicher Muster**
 - 3.1 Interpretation der Interferenzstreifen bei Phasenobjekten
 - 3.2 Strukturtypen
 - 3.3 Film: "Pool Flames, Dynamics of Dissipative Structures"

1.0 Einführung: Charakterisierung der untersuchten Diffusionsflammen

- freie (nicht-enclosed) *Gleichstromdiffusionsflammen*



nicht-vorgemischter Zustrom von Brennstoff und Luft, die *parallel* strömen; *Variation der Umgebungsatmosphäre*

Φ : Äquivalenzverhältnis

- auch als reine *Vormischflamme* (z.B. CH_4 : $0.5 < \Phi < 1.68$) sowie als *Übergang* zur *Diffusionsflamme* (z.B. CH_4 bis $\Phi = 3$) betrieben

- *stationäre* und *instationäre* Diffusionsflammen
- *thermischer Auftrieb* der Flammengase

Anfangsimpulsstrom \ll auftriebsbedingte konvektive Trägheitskraft

\Rightarrow *slow flows*: $0.05 < u_{ax} < 2.5$ m/s ($d = 4.6$ cm, n-Hexan)

u_{ax} : axiale Strömungsgeschwindigkeit
 d : Tankdurchmesser

- *Strömungszustand*

laminar

- *transport-limitiert*

$r_R \gg r_T$ (d.h. fast chemistry)

r_R : Reaktionsgeschwindigkeit
 r_T : Transportgeschwindigkeit

- *Bildung von Rußteilchen*

Temperatur-*Erniedrigung* infolge kontinuierlicher *Wärmestrahlung* der Rußpartikel

● *Mehrphasensysteme*

bei *gasförmigen* Brennstoffen : heterogenes *2-Phasen-*
system aus Gas- und
Rußpartikelphase

bei *flüssigen* Brennstoffen : heterogenes *3-Phasen-*
system aus der flüssi-
gen Brennstoffphase,
der Gas- und Rußpar-
tikelphase

- *Neues Konzept:* (Gleichstrom-) Diffusionsflammen als **Makrofluid** mit partieller Segregation, offenes *Reaktionssystem* mit ständigem **Stoff-, Energie- und Impulsaustausch an den Phasengrenzflächen**, d.h. zur Umgebung und zum flüssigen Brennstoff

- große *Inhomogenitäten* bezüglich T, y_i, \mathbf{u}

T : Temperatur

- axiale und radiale Profile

y_i : Massenbrüche der Spezies i

\mathbf{u} : Vektor der Strömungsgeschwindigkeit

- axiale und radiale Dispersion sowie axialer Wärmerückstrom (Energie-Rückkopplung) zur flüssigen Phase
- Viskositätserhöhung (Laminarisierungseffekt) infolge (lokal) hoher Gastemperaturen
- *breite Verweilzeit-Verteilung*

d.h. große Abweichung von idealer Kolbenströmung infolge *kleiner* Bodenstein-Zahl Bo

$$Bo = \left(\frac{D_{ax}}{uH} \right)^{-1} : D_{ax} : \text{axialer Dispersionskoeffizient}$$

H : mittlere Flammenlänge

u : mittlere Strömungsgeschwindigkeit

CH₄/Luft-Diffusionsfl. ($d = 4.6 \text{ cm}$) : 13.5

n-Hexan/Luft-Diffusionsfl. ($d = 4.6 \text{ cm}$) : 28.6

○ **Makrofluid**

- Ausbildung von *Molekülanhäufungen* (mindestens 10^{10} bis 10^{20} Moleküle) zu Fluidelementen in komplexen Systemen fern vom chemischen Gleichgewicht und mit nichtlinearer Kinetik

⇒ supramolekulare Organisation zu dissipativen, organisierten bzw. → kohärenten Strukturen

- *partielle Segregation*: teilweise Vermischung bzw. teilweise WW zwischen den Fluidelementen

- *Zeitskalen*

$$t_R \ll t_M$$

t_R : charakt. Reaktionszeit

$$\bar{\tau} \ll t_M$$

t_M : charakt. Mikromischzeit

$\bar{\tau}$: Raumzeit, hydrodyn. Verweilzeit

⇒ (endlich) schnelle Chemie, jedoch noch stofftransport-limitiert

CH₄/Luft-Diffusionsfl. ($d = 4.6 \text{ cm}$) :

$$t_R = \frac{1}{\text{Da}_{II}} t_M \approx \frac{1}{455} t_M$$

$$\tilde{\tau} \approx \frac{1}{5} t_R$$

● kohärente Strukturen

- *Vorkommen:* nichtreagierende und reagierende turbulente Strömungen, z.B. in Grenzschichten, Jets, Mischungsschichten, Flammen, allgem. in Makrofluiden
- *Aggregate:* (Molekülanhäufungen, deren Moleküle *langreichweitig* räumlich und zeitlich *korreliert* sind), Fluidelemente

turbulente (Wirbel-) Ballen; pockets; parcels; lumps; eddies

z.B. gefaltete/gewinkelte Flammenfronten, flamelets
individuelle (organisierte) Bereiche, die sich "eigenständig" bewegen

- *Größe der Aggregate:*

abhängig von: hydrodynamischen Einflußgrößen
Fluideigenschaften, z.B. Viskosität, Diffusion

Korrelationslänge $\ell \approx \sqrt{D_M t_{\text{chem}}}$; t_{chem} : chem. Zeitskala (Abklingrate)

- zu *klass. Wirbeln unterschiedliche* Eigenschaften

- *Wachstum*, z.B. stromabwärts
- Bildung von *Mehrlingen*, z.B. Zwillinge, Trillinge
- geom. Abmessungen können konstant bleiben
- rel. große Lebensdauern: \Rightarrow Schadstoffbildung

Technisch bedeutsame Verbrennungsreaktionen (I)

transport - limitiert

- **Tropfenverbrennung** : Dieselmotor, Düsentriebwerke
- **Strahlflammen** : Hochtemp.-u.Metallurg. Öfen
Kesselfeuerungen, Gasturbine
- **Feststoff-Verbrennung** : Kohle, Metall. Komponenten
- **Hochtemp.-Reaktionen** : Techn. org. u. anorg. Chemie
- **Abfallverbrennung** : gasf.,flüss. u. feste Stoffe
(MVA, Klärschlamm-Verb.,
Seeverbrennung)

Technisch bedeutsame Verbrennungsreaktionen (II)

transport - limitiert

- **sog. unerwünschte Verbrennung** (→ Sicherheitstechnik in der chemischen Industrie)
 - Zündung freigesetzter Fluide
(Tankfarmen, Bohrinseln, Supertanker, Flugzeugträger, Tankfahrzeuge)
 - Zündung von Polymeren (Bayer AG, 1989)
 - Zündung unterirdisch gespeicherter Fluide
 - Graphitblock-Brand (Tschernobyl, 1986)
 - Chemikalienlager-Brand (Sandoz AG, 1986)
 - Flüssiggas-Pipeline (UdSSR, 1989)
 - Ethen/i-Butan-Brand (Phillips Petrol., 1989)
 - Hallenbrand (Düsseldorf Flughafen, 1996)
-
- Flächenbrände in der Natur
 - Steppen-, Waldbrände

Umweltechnische Aspekte (I)

Schadstoff-Emissionen durch
Verbrennungsreaktionen:

▫ CO/CO₂: Treibhauseffekt → Klima

▫ SO_x

▫ NO_x → O₃-Anstieg (Ozonglocke)

▫ NO_x → O₃-Schwund (Ozonloch)

▫ KW (auch Dioxine) → Müllverbrennung

▫ Partikel (z.B. Ruß) → Dieselmotoren

▫ Smogbildung

organisierte Strukturen: bewirken Ungemischtheit

(i.a. Erhöhung der

Schadstoffemission)

2.0 Experimentelles

2.1 Experimentelle Methoden zur *Visualisierung* kohärenter Strukturen in Flammen

- vorwiegend *berührungsfreie* und *trägheitsfreie* Messmethoden möglichst hoher *örtlicher* und *zeitlicher* Auflösung

- relativ viele Methoden *simultan* eingesetzt infolge der komplexen Phänomene an komplizierten Meßobjekten

- vorwiegend *keine* Punktmessungen sondern 2-D Messungen zur *Visualisierung* der kohärenten Strukturen

- ***VIS*-Strahldichtestrukturen**
 - Hochgeschwindigkeits-Fotografie

- ***IR*-Strahldichtestrukturen**
 - Thermografie-Kamerasystem mit digitaler Bildanalyse

■ Dichtestrukturen

- *Schatten-Strukturen* $\left(\frac{\partial^2 \rho_m}{\partial y^2} - \text{Felder} \right)$

- *Schlieren-Strukturen* $\left(\frac{\partial \rho_m}{\partial y} - \text{Felder} \right)$

- *Interferogramm-Strukturen* $(\rho_m - \text{Felder})$

$\rho_m(x, y, z)$: Massendichte-Feld des
Flammengasgemisches

Experimentelles

Experimentelle Methoden (I)

1 Dynamische Simultan-Dichtestrukturen

Dichtestrukturen simultan mit
VIS-Strahldichtestrukturen

Holografische Realtime
Durchlicht-Interferometrie

2 Dynamische Strahldichtestrukturen

VIS-Strahldichtestrukturen
IR-Strahldichtestrukturen

Hochgeschwindigkeits-Fotografie
Thermografie-Kamerasystem mit Video-Mischeinheit
digitale Bildanalyse

3 Zeitlich gemittelte Strahldichtestrukturen

VIS-Strahldichtestrukturen

Langzeit-Fotografie
digitale Bildanalyse

4 Zeitlich gemittelte Bestrahlungsstärken

E (y,d, Brennstoffe) vom VIS bis
IR-Spektralbereich

pyroelektrische und
ellipsoidale Radiometrie

Experimentelles

Experimentelle Methoden (II)

5 Sondenmethoden

$T_F(I, x); u(I, x); \gamma_i(I, x); c_R(I, x)$

PtRh/Pt-Thermoelemente
fotoelektrische Detektoren
Gaschromatografie

6 Frequenzspektren

- der thermischen Grenzschicht-Elongation $y_G(t)$
- der Anzahl $w(t)$ von Dichtequellen und -senken
- des dynamischen Druckes $p_{dyn}(t)$
- der Strahlendichte $L_{\Delta\lambda}(y, x, t)$

Interferometrie
Interferometrie
Differenzdruckaufnehmer und
Spektrumanalysator
fotoelektrische Detektoren

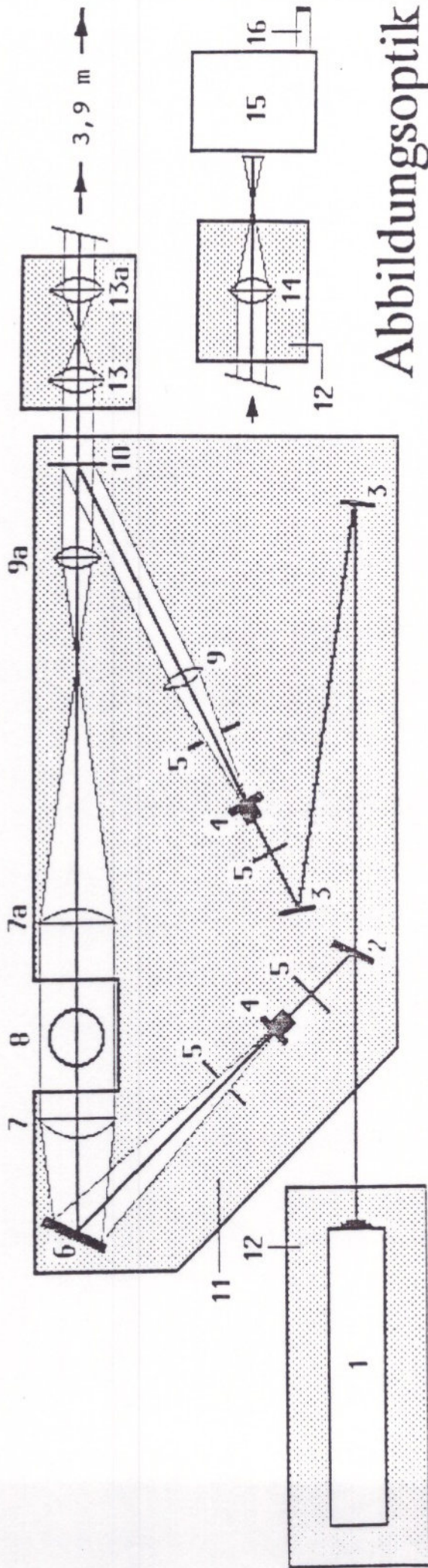
7 Meteorologische Einflußgrößen

$u_{wi}(t); \vec{u}_{wi}(t)$

10 m-Kurbelmast mit elektronischer
Wetterstation

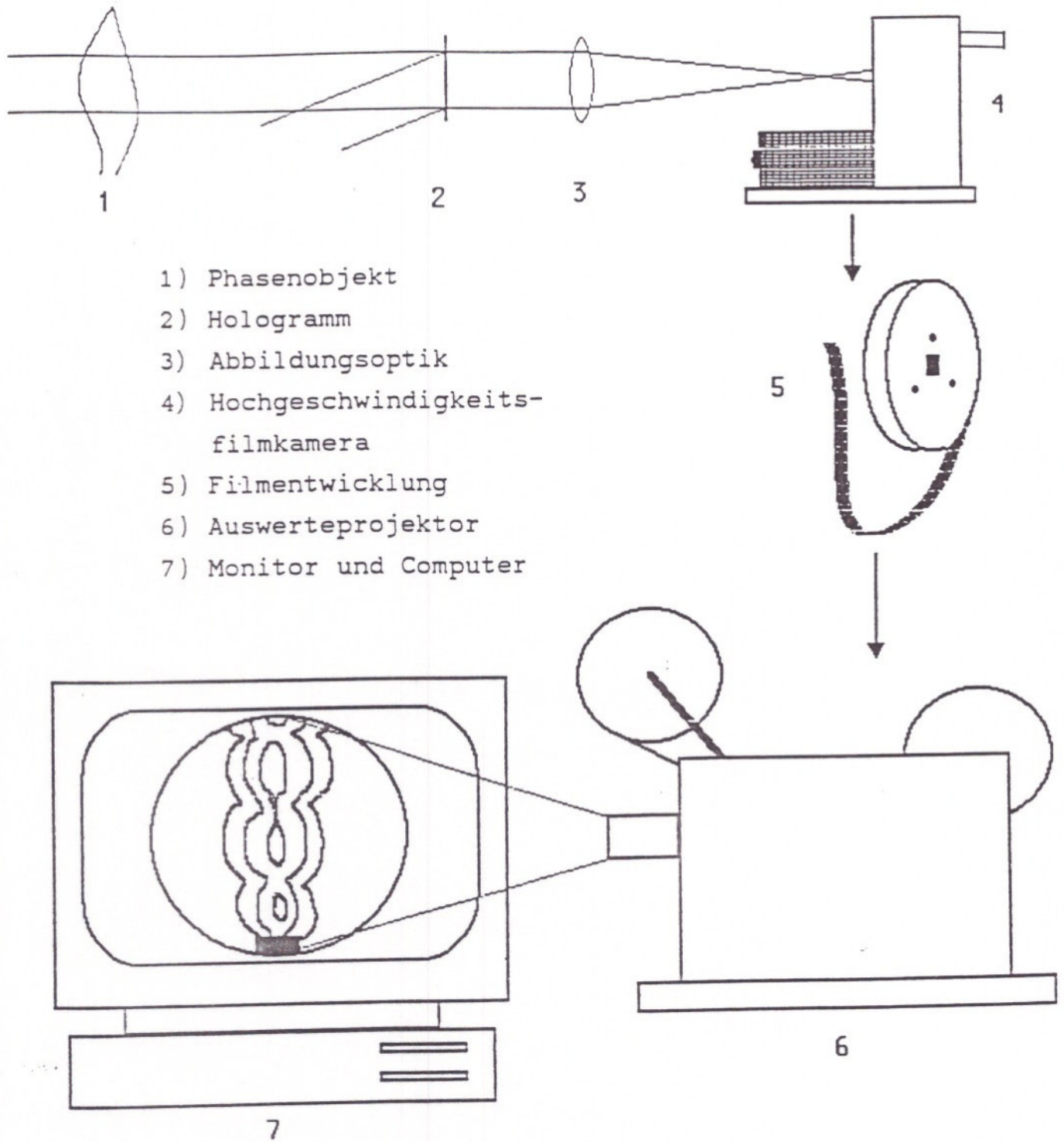
2.2 Holografisches real-time Durchlicht-Interferometer mit 25 cm Laserstrahlaufweitung

Strahlengang des holografischen Real-time-Durchlichtinterferometers

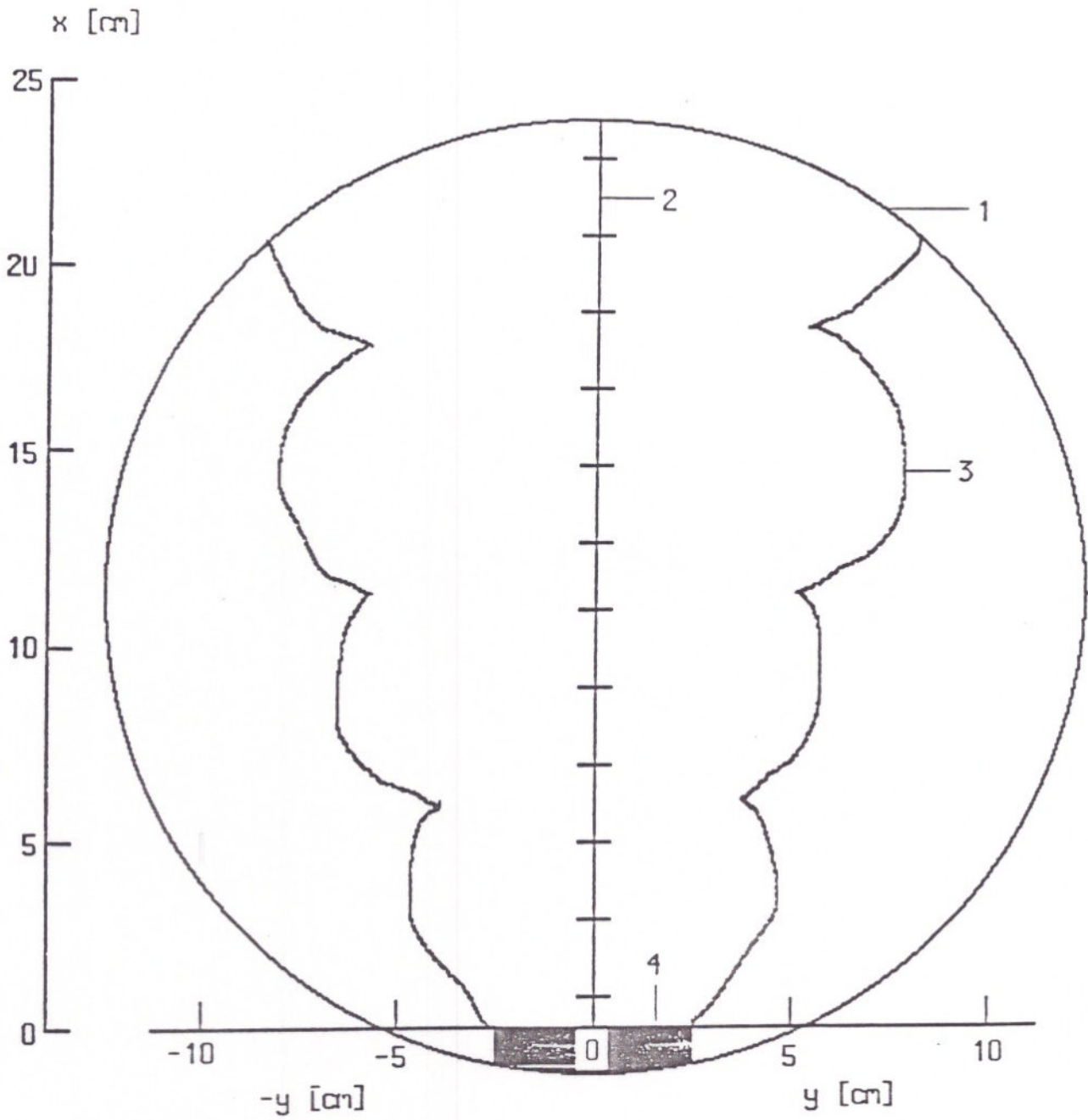


Abbildungsoptik

1)	2 W-cw-Argonlaser	9 u. 9a)	7.8 cm Achromat, $f = 31$ cm
2)	Strahlteiler	10)	Hologrammplatte
3)	Spiegel	11)	Granitplatte
4)	Strahlaufweitung	12)	Betonfertigteile
5)	Irisblende	13 u. 13a)	7.8 cm Achromat, $f = 16$ cm
6)	22 cm Planspiegel	14)	7.8 cm Achromat, $f = 31$ cm
7 u. 7a)	25 cm Linse (plankonvex)	15)	Hochgeschwindigkeitskamera Hycam
8)	Testraum	16)	Mikroskopokular



Computergestütztes Auswertesystem zur digitalen Datenerfassung der Interferogramme



- 1) Interferenzfeldkontur
- 2) Referenzskalierung des Phasenobjekts
- 3) Objektkontur
- 4) Tankrand

Koordinatensystem des projizierten Interferogramms
zur Datenerfassung über den Bildschirm

2.3 Gasförmige Fluide (*nichtreagierende Strömungen*)

Helium

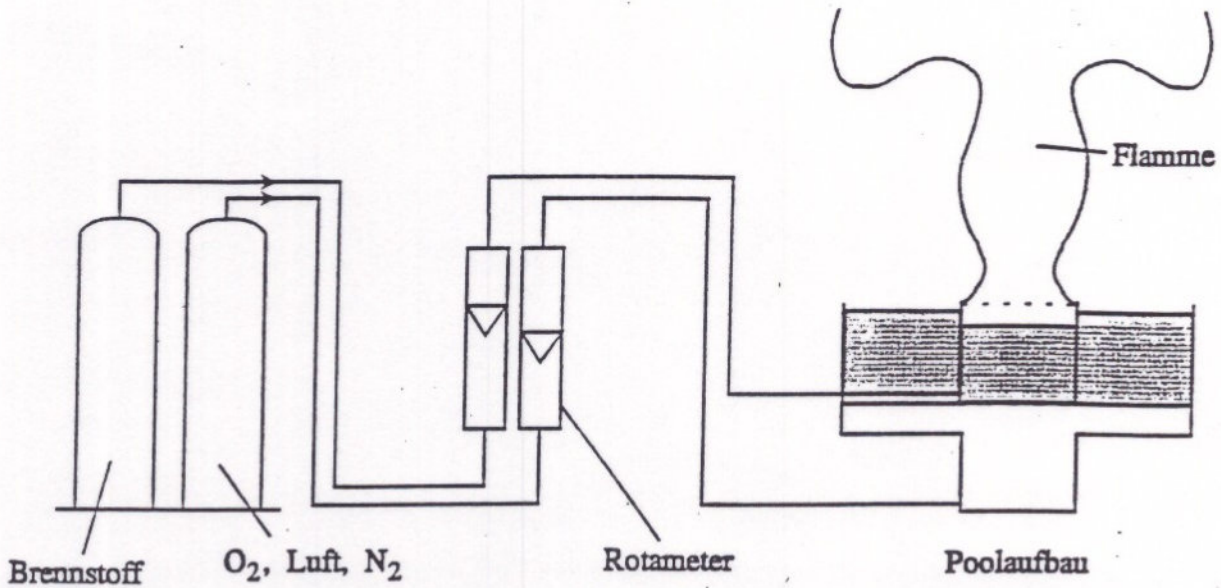
Heißluft

Methan (ungezündet)

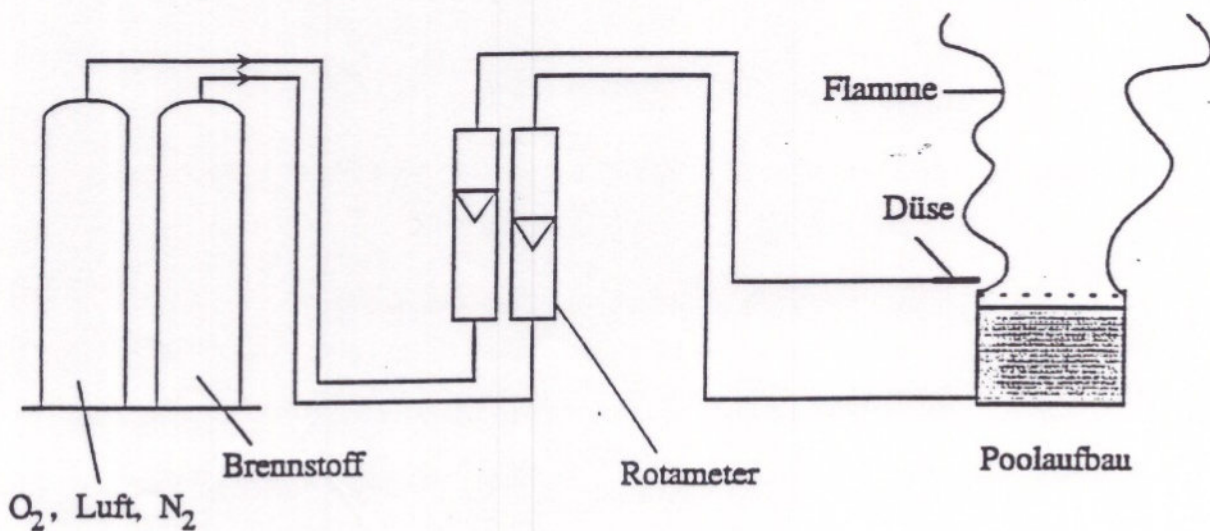
2.4 Gasförmige und flüssige Brennstoffe (reagierende Strömungen)

Methan	Methanol	Acetaldehyd	Essigsäure	Benzol
LNG	Ethanol	Aceton	Essigsäuremethylester	
n-Butan	Propanol	Diethylether		
n-Pentan	Cyclohexanol			
n-Hexan	Glycerin			
n-Heptan				
Superbenzin				
Dieselmotortreibstoff				
JP-4				
Wasserstoff				

2.5 Brennstoffversorgung und Tankaufbauten bei gasförmigen und flüssigen Brennstoffen (*reagierende Strömungen*) (I)

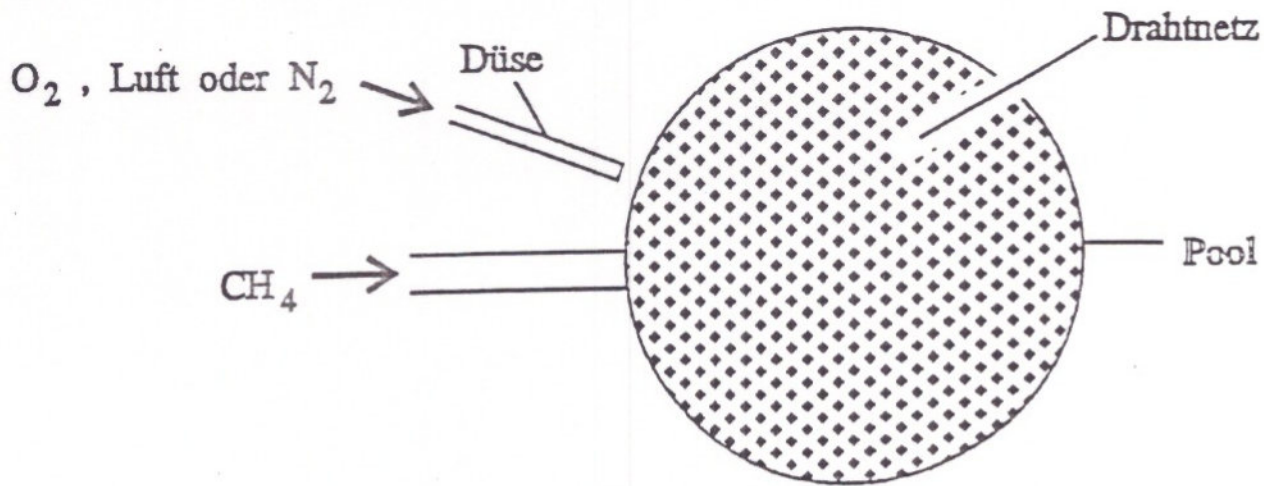
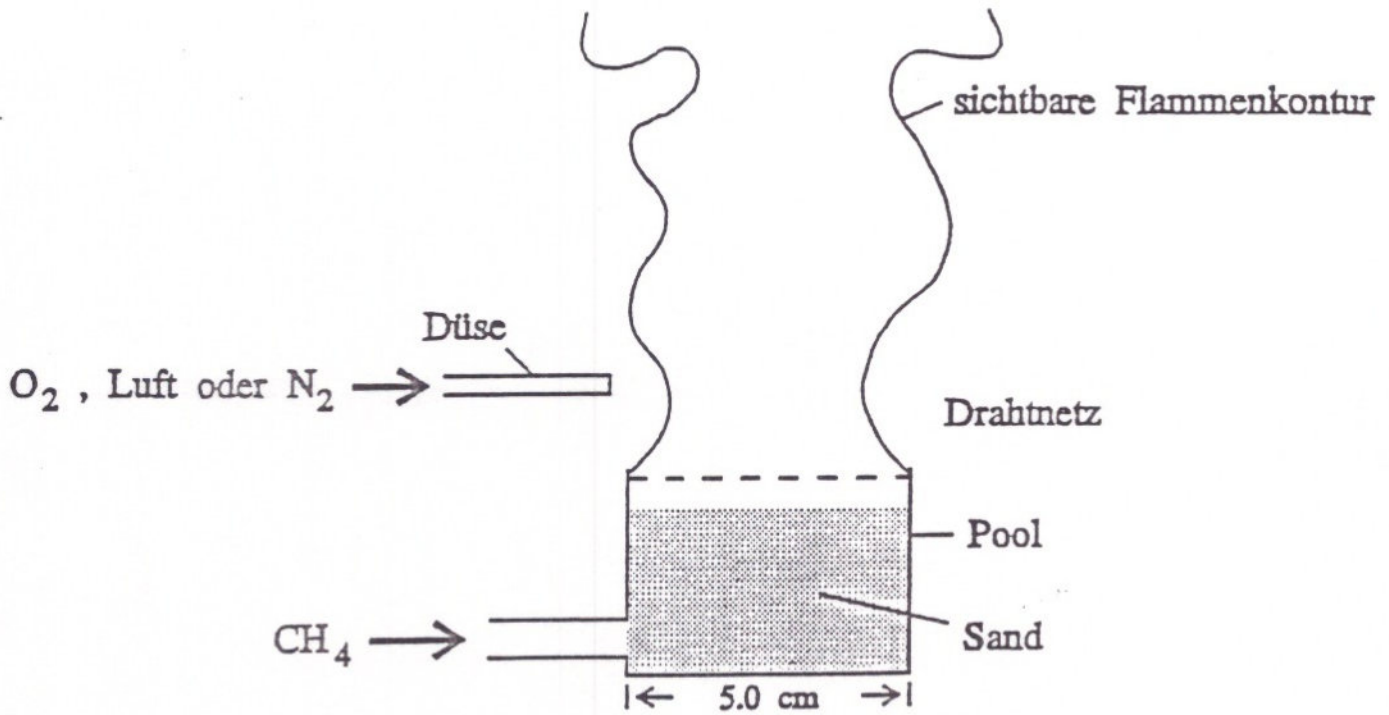


Brennstoffversorgung bei gasförmigen Brennstoffen und variabler Umgebungsatmosphäre infolge **axialer** Gaseinleitung



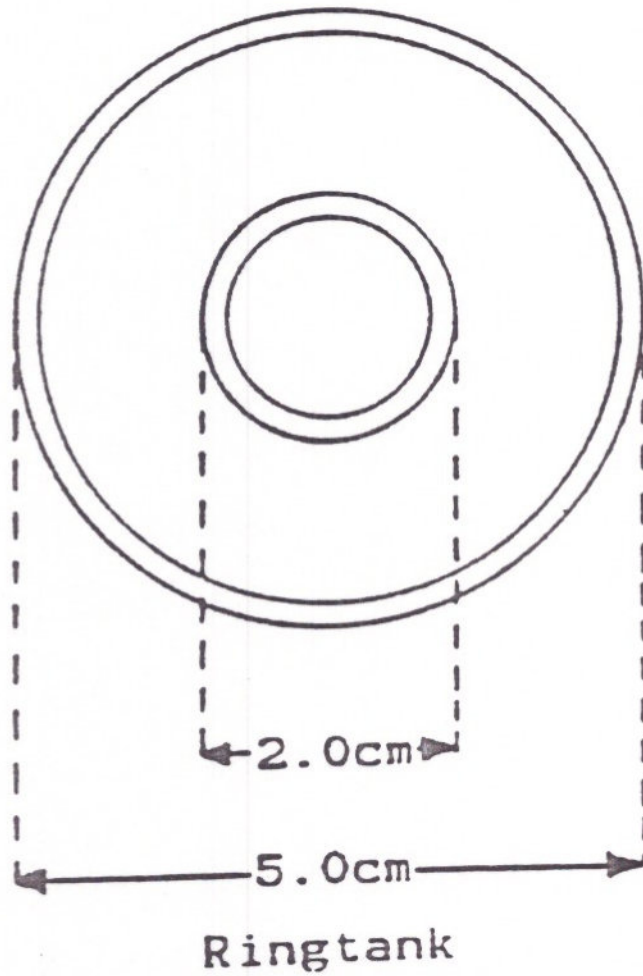
Brennstoffversorgung bei gasförmigen Brennstoffen und radialer Gaseinleitung

2.5 Brennstoffversorgung und Tankaufbauten bei gasförmigen und flüssigen Brennstoffen (*reagierende Strömungen*) (II)

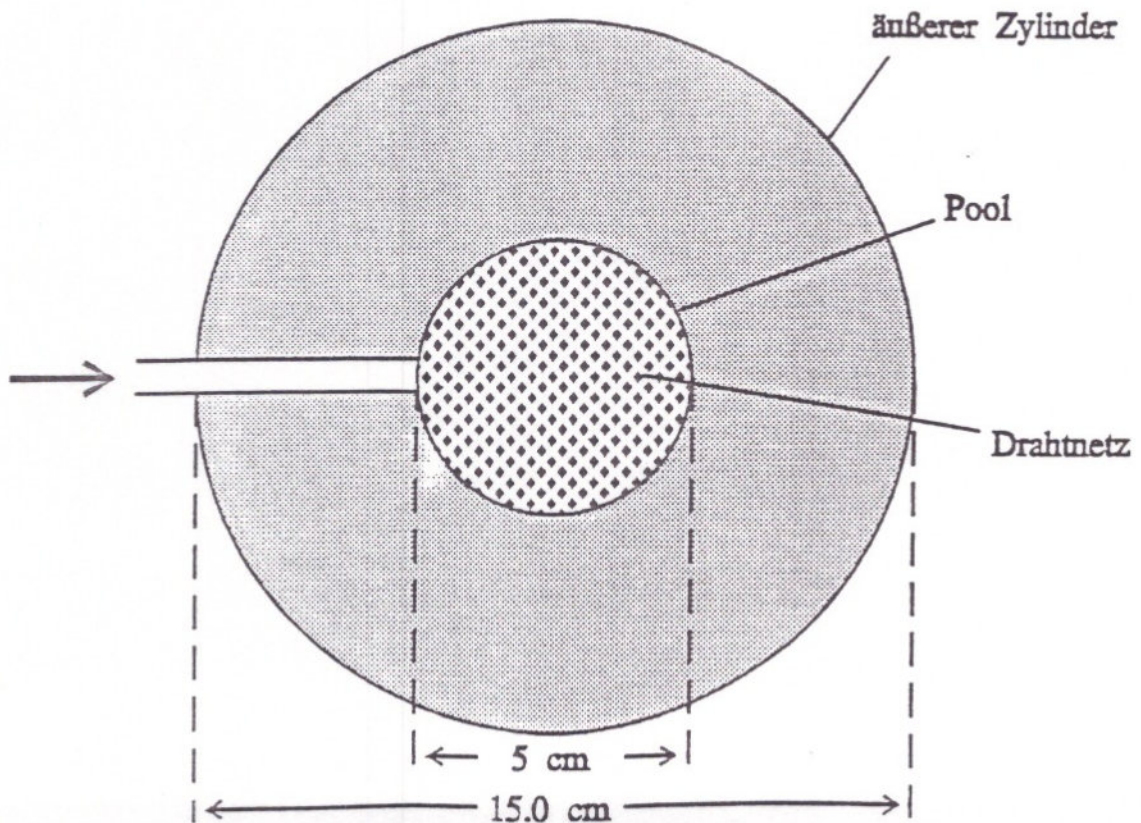
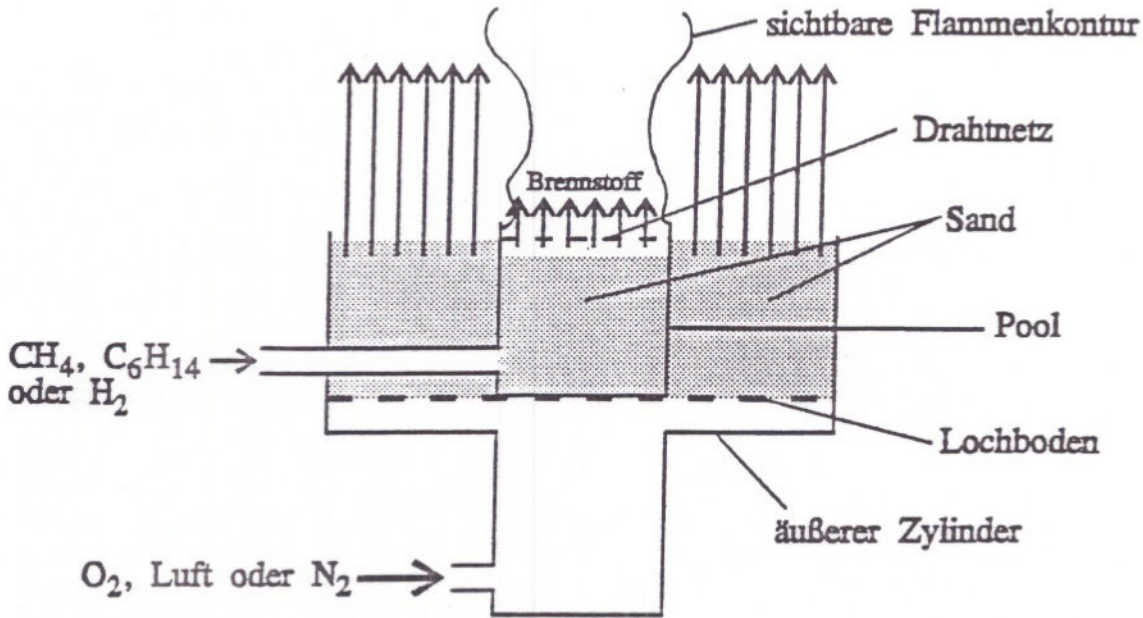


Poolaufbau bei radialer Gaseinleitung knapp über dem Poolrand

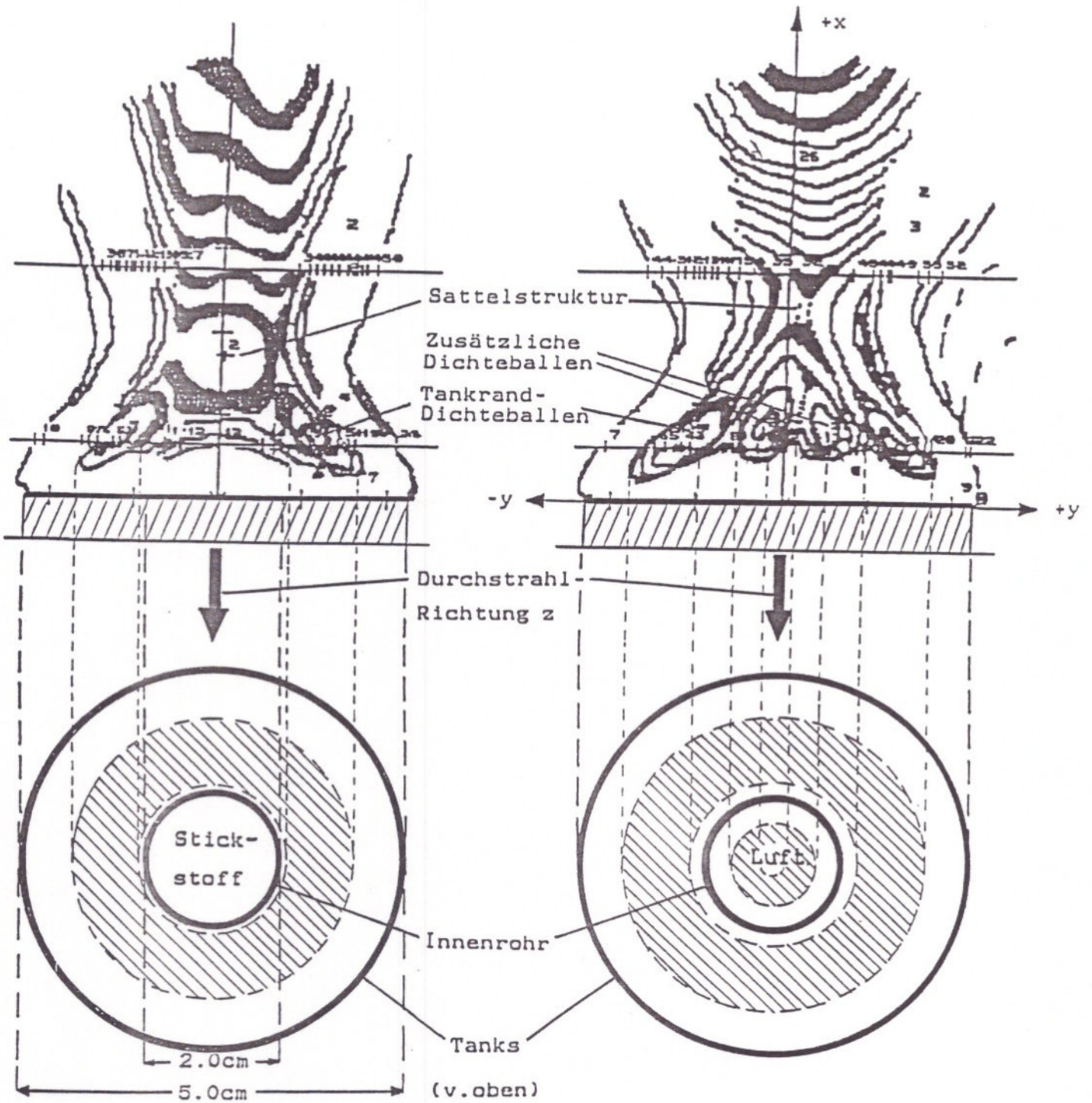
2.5 Brennstoffversorgung und Tankaufbauten bei gasförmigen und flüssigen Brennstoffen (*reagierende Strömungen*) (III)



2.5 Brennstoffversorgung und Tankaufbauten bei gasförmigen und flüssigen Brennstoffen (*reagierende Strömungen*) (IV)



Poolaufbau zur Variation der Umgebungsatmosphäre von Poolflammen



(a)

(b)

Tankrand-Dichteballen einer n-Hexan Tankflamme bei der axialen Zufuhr von:

a) Stickstoff

b) Umgebungsluft

3.0 Dynamische Muster (dissipative bzw. kohärente Strukturen)

3.1 Interpretation der Interferenzstreifen bei Phasenobjekten

Linien konstanten Eikonals (Linien-Integral):

$$S(x, y, t) \lambda = \int_{-z_G}^{+z_G} (n_m(x, y, z, t) - n_u) dz$$

n_u : Brechzahl der Umgebungsluft

$n_m(x, y, z)$: Brechzahlfeld des Flammengasgemisches

Abel-Inversion:

$$n_m(r, x, t) - n_u = - \frac{\lambda}{\pi} \int_r^R \frac{\left(\frac{\partial S(y, x, t)}{\partial y} \right)_x}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy$$

λ : Laserwellenlänge

Gladstone - Dale Gleichung:

$$\rho_m(r, x, t) = \frac{2}{3} [n_m(r, x, t) - 1] \frac{\sum_i \gamma_i(r, x)}{\sum_i \gamma_i(r, x) \cdot N_i^\ominus}$$

ideales Gasgesetz:

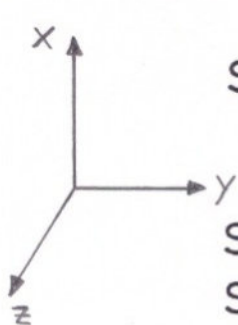
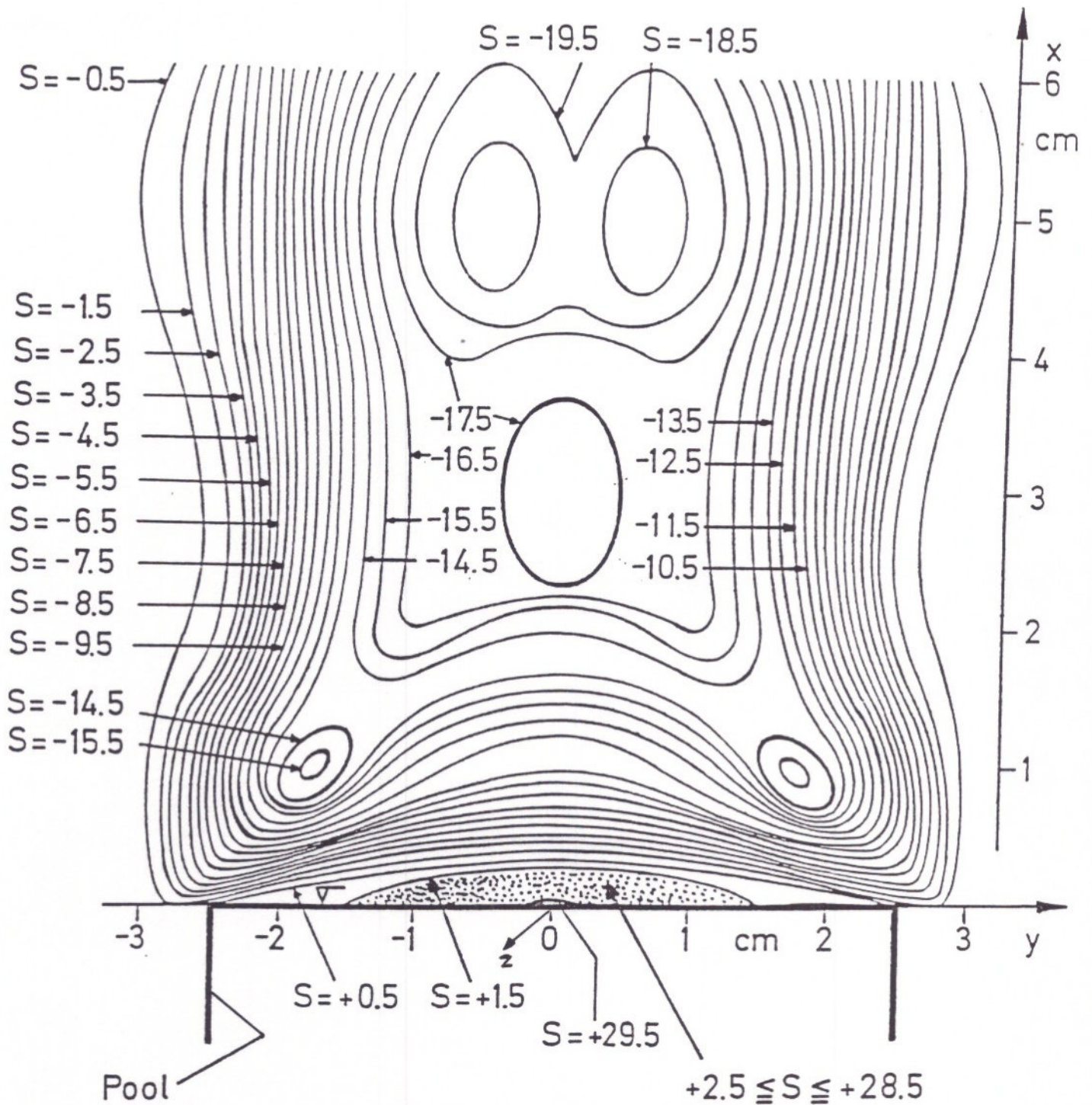
$\gamma_i \equiv y_i$: Massenbruch der Gas-
komponente i

N_i^\ominus : spezifische *Standard-*
Refraktion

$$T(r, x, t) = \frac{\sum_i \gamma_i(r, x) \rho_i^\ominus}{\sum_i \gamma_i(r, x)} T^\ominus \frac{1}{\rho_m(r, x, t)}$$

Flammenfahne: Konzentrationseinfluß (y_i) vernachlässigbar

Interferenzstreifenmuster $\hat{=}$ Dichtestrukturen



$$S(x, y, t) \lambda = \int_{-z_G}^{+z_G} (n_m(x, y, t) - n_u) dz$$

$S < 0 : n_m < n_u \rightarrow$ optisch dünner
 $S > 0 : n_m > n_u \rightarrow$ optisch dichter

$$n_m \equiv n_F \sim \frac{1}{c_F} \sim \rho_F \sim \frac{1}{T}$$

Berechnetes Interferenzstreifenmuster einer n-Hexan-Poolflamme mit $d = 4.6 \text{ cm}$

⇒ für $t = t_1 = \text{const}$ (*Momentbilder*) gilt:

Linien mit der Interferenzstreifenordnung $S(y, x, t_1) = \text{const}$ entsprechen näherungsweise Linien mit $\rho_m = \text{const}$ (*Isodichtenfeld*) bzw. Linien mit $T = \text{const}$ (*Isothermenfeld*)

■ Inhomogenitäten

$$\left(\frac{1}{b}\right)_t = \left(\frac{\partial S}{\partial y}\right)_t \sim \left(\frac{\partial \rho}{\partial y}\right)_t \sim \left(-\frac{\partial T}{\partial y}\right)_t$$

b [mm]: Linien (Streifen) *abstand*

$1/b$ [$\frac{1}{\text{mm}}$]: Linien (Streifen) *dichte*

■ Zeitabhängiges Verhalten

$$\left(\frac{\partial S}{\partial t}\right)_{y,x} \sim \left(\frac{\partial \rho}{\partial t}\right)_{y,x} \sim \left(-\frac{\partial T}{\partial t}\right)_{y,x}$$

⇒

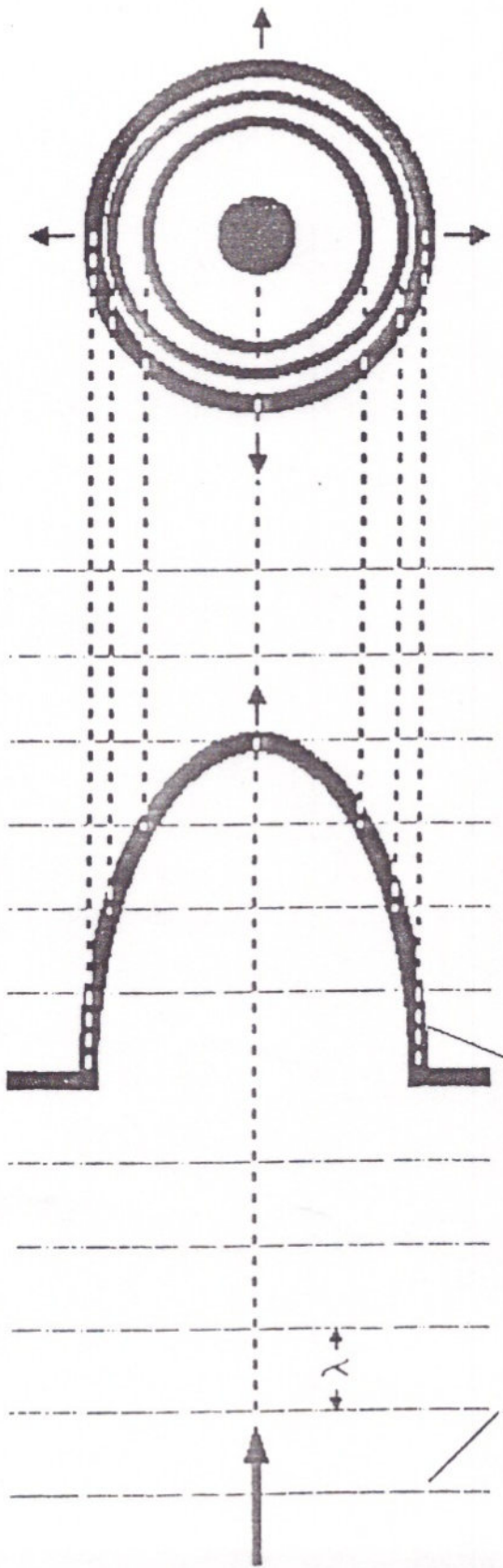
$\rho'(t), T'(t)$: Dichte-, Temperaturfluktuationen

$\rho(y, x, t), T(y, x, t)$: periodische, quasiperiodische und chaotische Dichte - bzw. Temperaturänderungen

■ raum-zeitliche Strukturen (→ Quellen S und Senken S)

spontane Entstehung, charakteristische Längen, Translationsgeschwindigkeiten, Aufstiegsfrequenzen und Kommunikation lokaler Strukturen mit $S = \text{const}$ als äußere Kontur



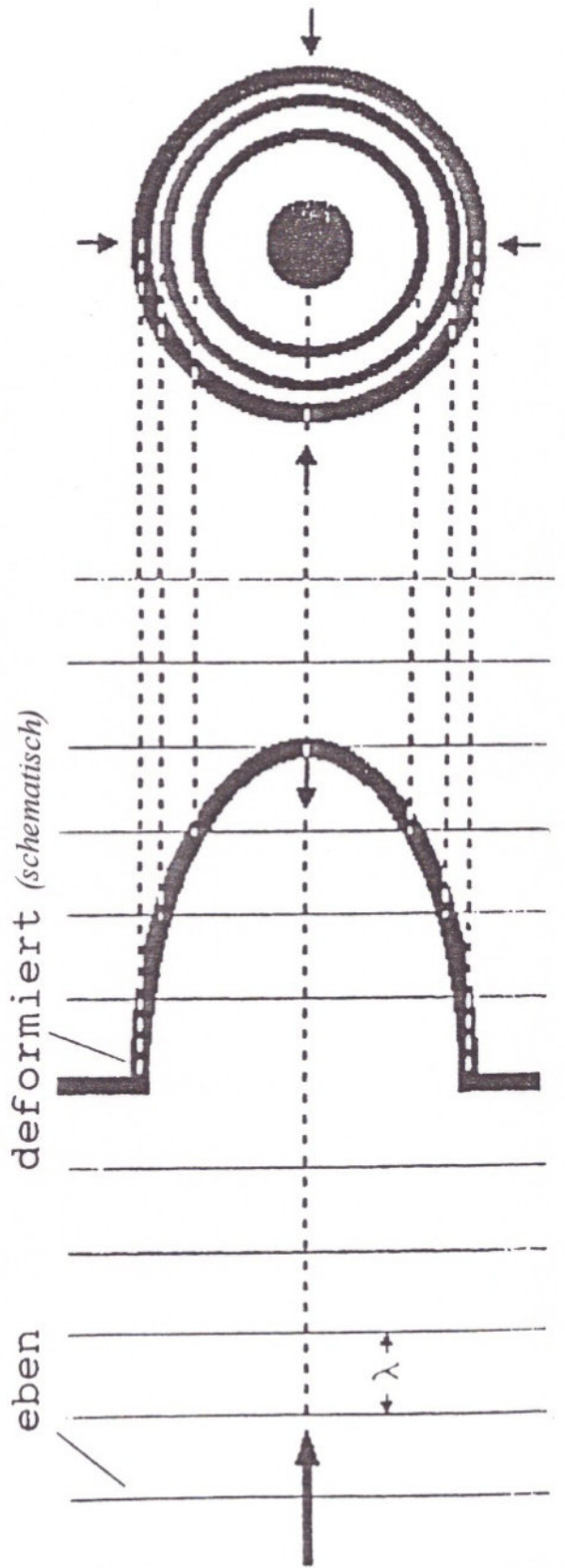


Quelle (schematisch)

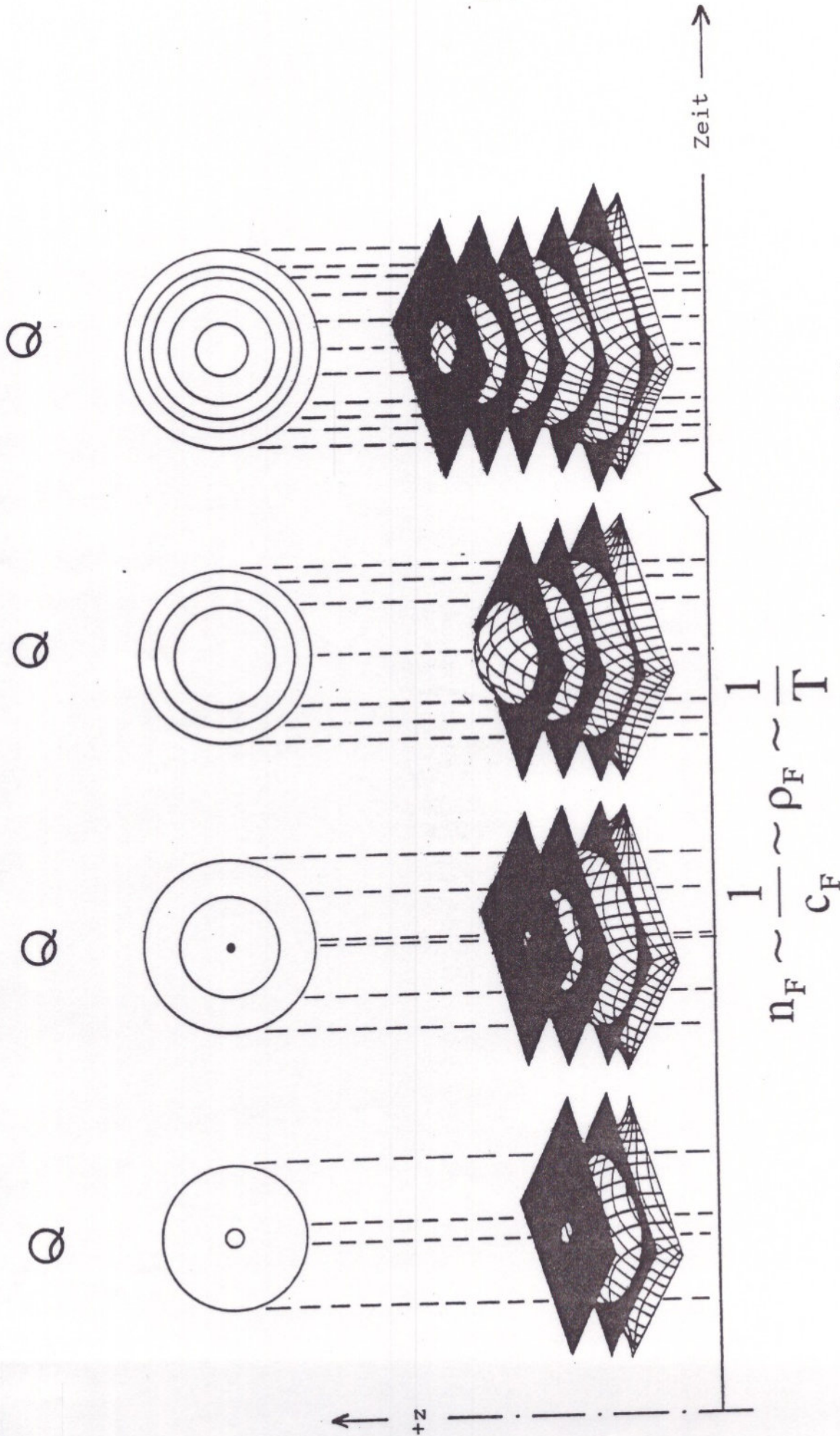
ebene und deformierte (schematisch)

Lichtwellenfronten

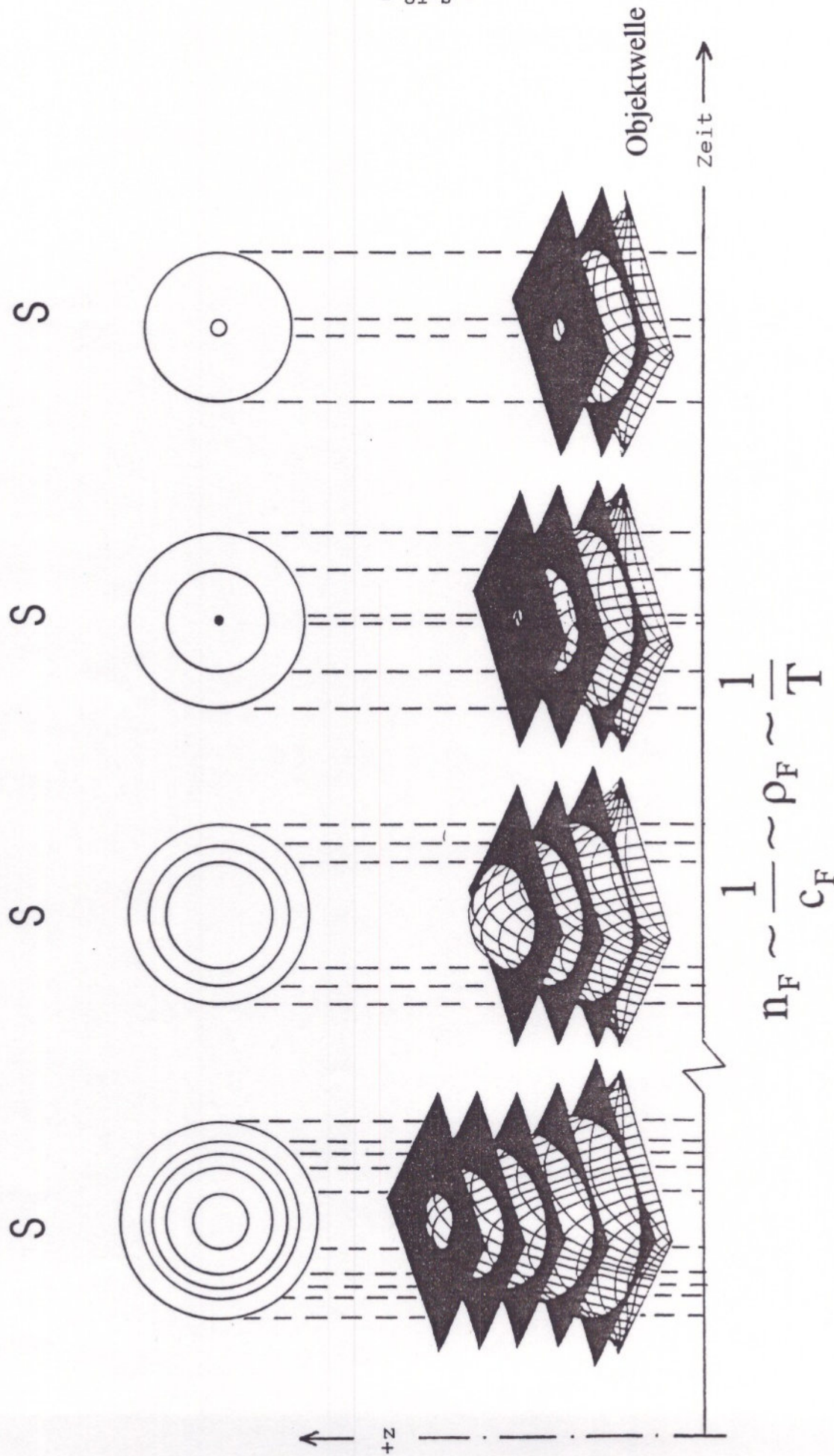
$$n_F \sim \frac{1}{c_F} \sim \rho_F \sim \frac{1}{T}$$



Senke (schematisch)

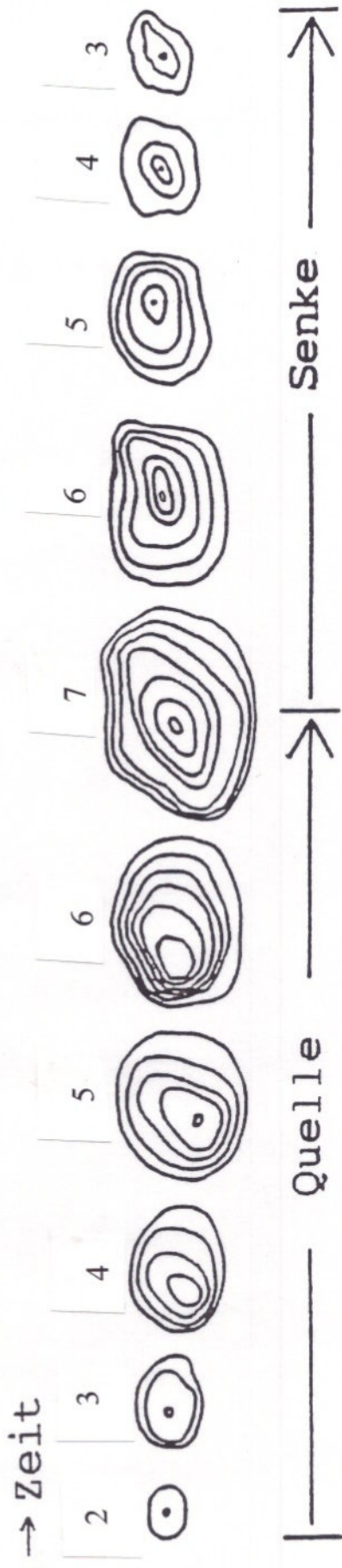


Entstehung einer Dichtewelle durch fortschreitende Deformation der Objektwelle im zeitlichen Ablauf



Entstehung einer Dichtesenke durch nachlassende Deformation der Objektwelle im zeitlichen Ablauf (schematisch)

c_F : Lichtgeschwindigkeit in der Flamme F



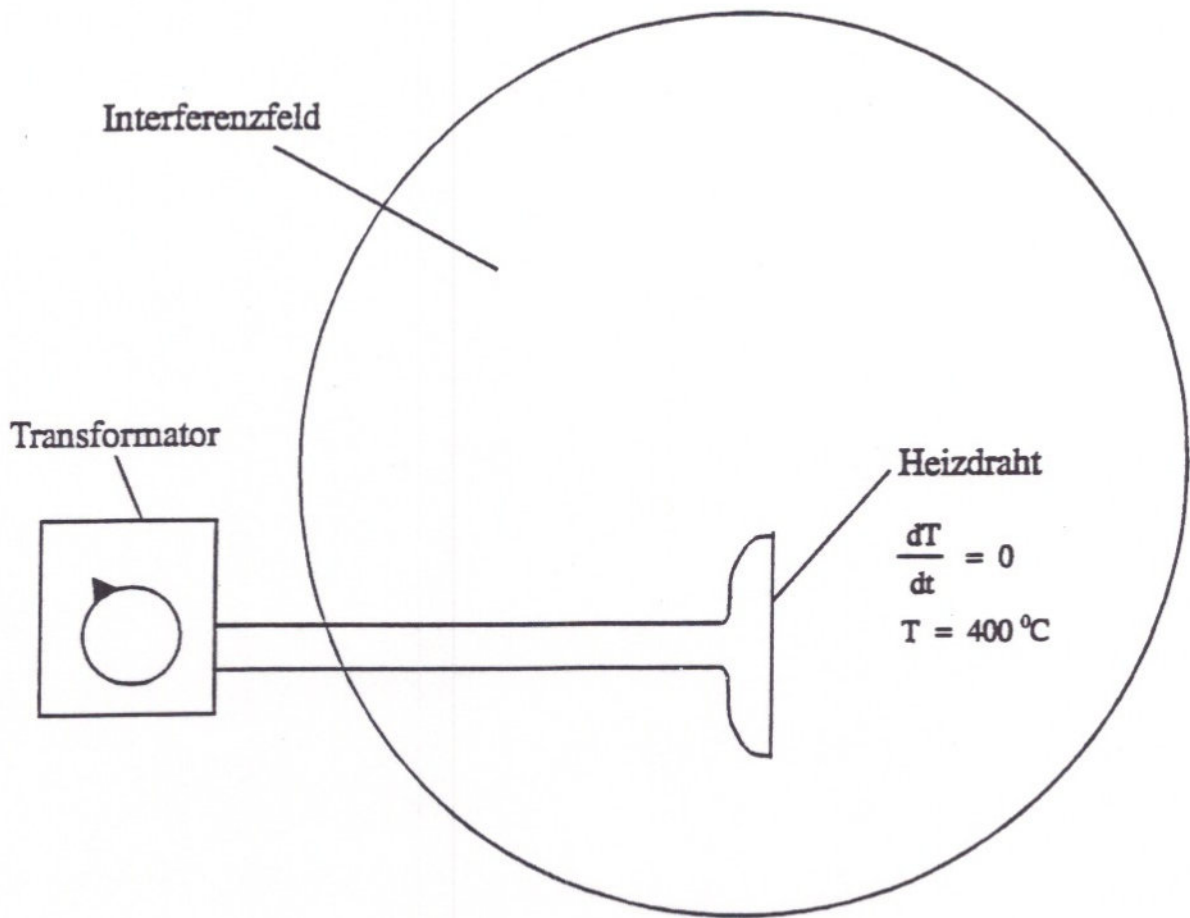
lokale, zeitliche Dichteabnahme
bzw. Temperaturzunahme:

$$\frac{dp}{dt} < 0 \quad \text{bzw.} \quad \frac{dT}{dt} > 0$$

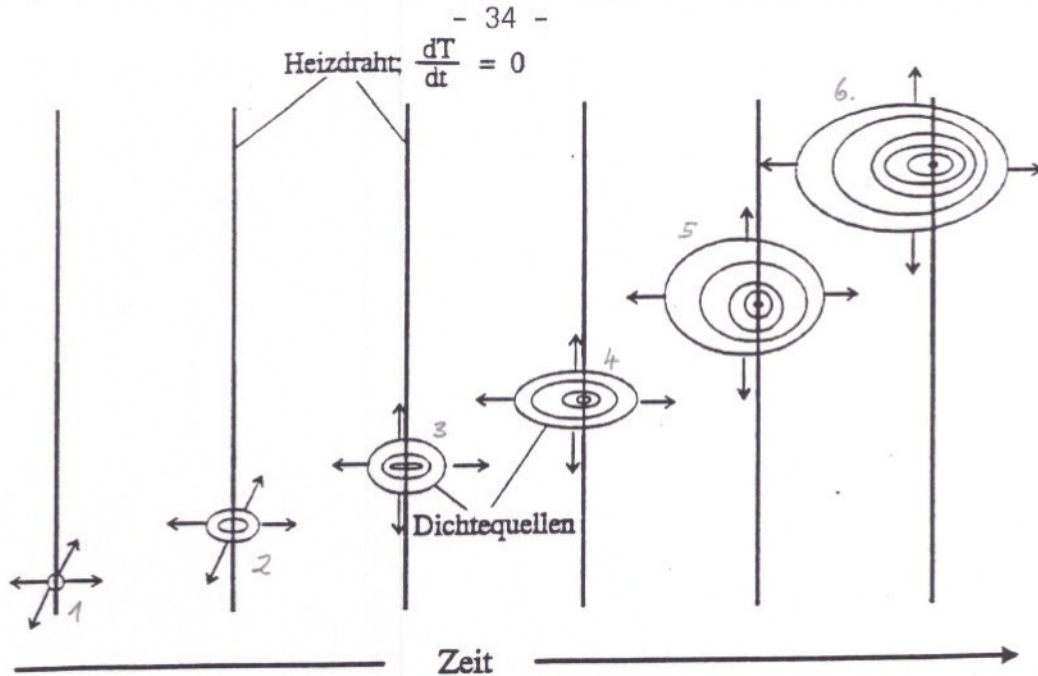
lokale, zeitliche Dichtezunahme
bzw. Temperaturabnahme:

$$\frac{dp}{dt} > 0 \quad \text{bzw.} \quad \frac{dT}{dt} < 0$$

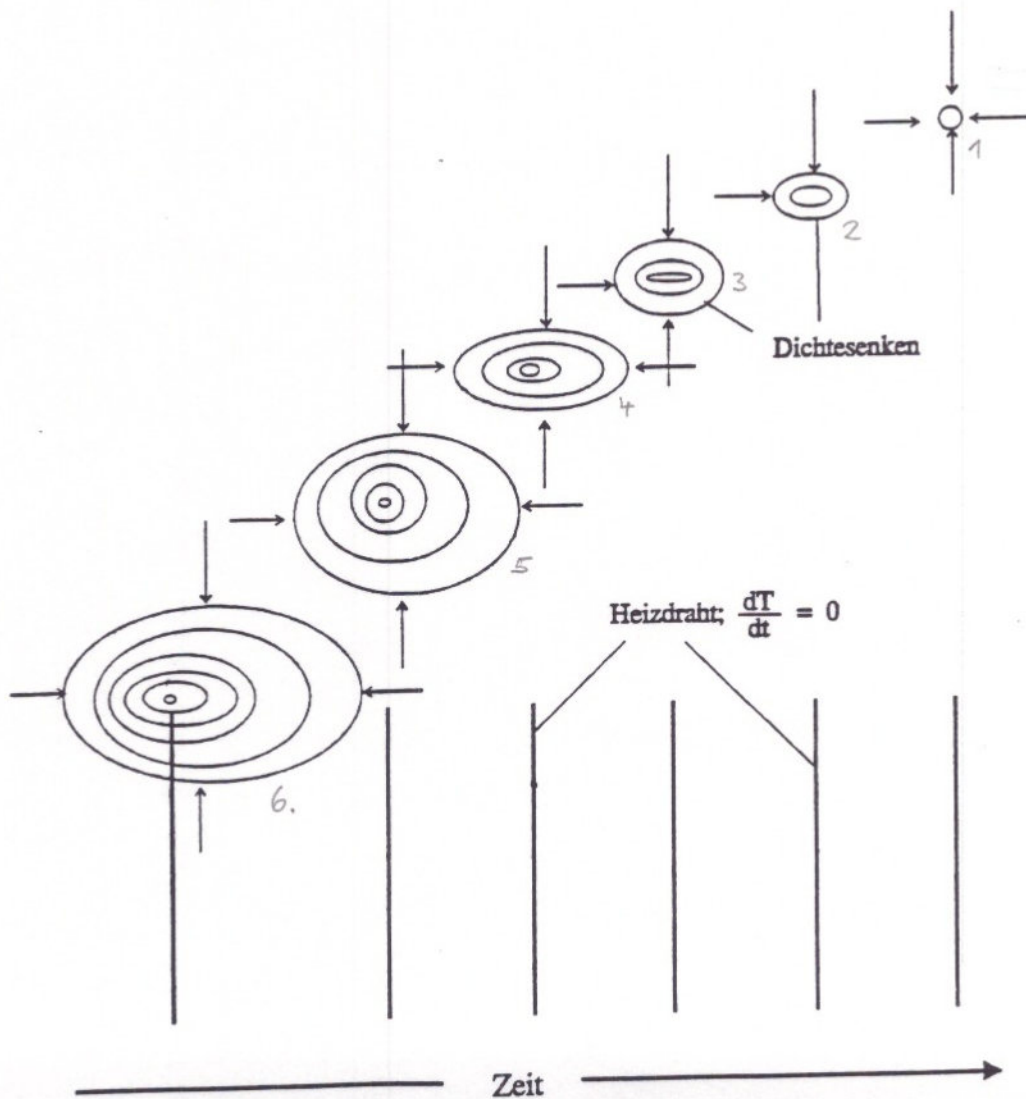
⇒ reale Quellen (Q) und Senken (S) : *asymmetrische* Phänomene (Symmetriebrechung)



Simulation von Dichtequellen (Q) mit einem vertikalen Heizdraht konstanter Temperatur als lokalisierte Wärmequelle zur *lokalen Temperaturerhöhung* eines Luft-Volumenelements in der Umgebung des Heizdrahts
bei Ablösung der Dichtequellen (Q) vom Heizdraht:
Aufsteigen von Dichtesenken (S)



Dichtequellen Q, die an einem vertikalen Draht konstanter Temperatur entstehen (schematisch)



Dichtesenken S, die oberhalb des beheizten Drahtes entstehen (schematisch)

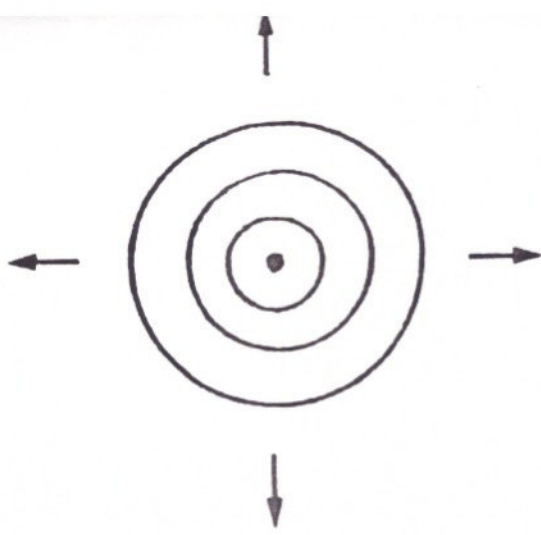
3.2 Strukturtypen

Strukturtypen in auftriebsbestimmten Diffusionsflammen (I)

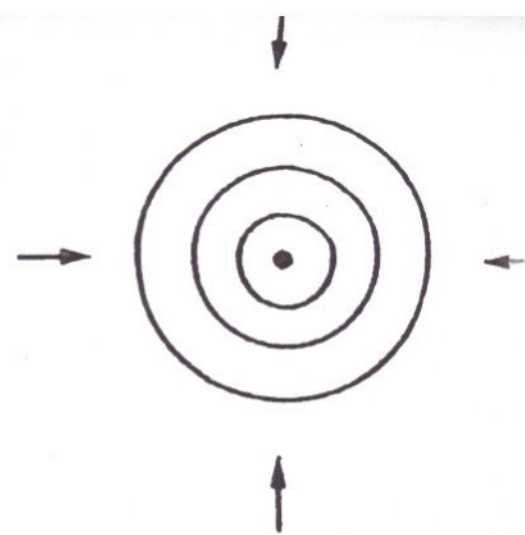
- *Bereich Flammenhals*
 - thermische Grenzschichtwelle
 - Brennstoff-Grenzschichtschwingung
 - *Tankrand*-Dichtequellen (Q)
 - *axiale* Dichtequellen (Q)

Strukturtypen in auftriebsbestimmten Diffusionsflammen (II)

- *Bereich Flammenfahne*
 - thermische Grenzschichtwelle
 - Dichtequellen (Q) und Dichtesenken (S)
 - Mehrfach-Kombinationen (Mehrlinge) von Q und S
 - Bandelemente
 - Inselemente

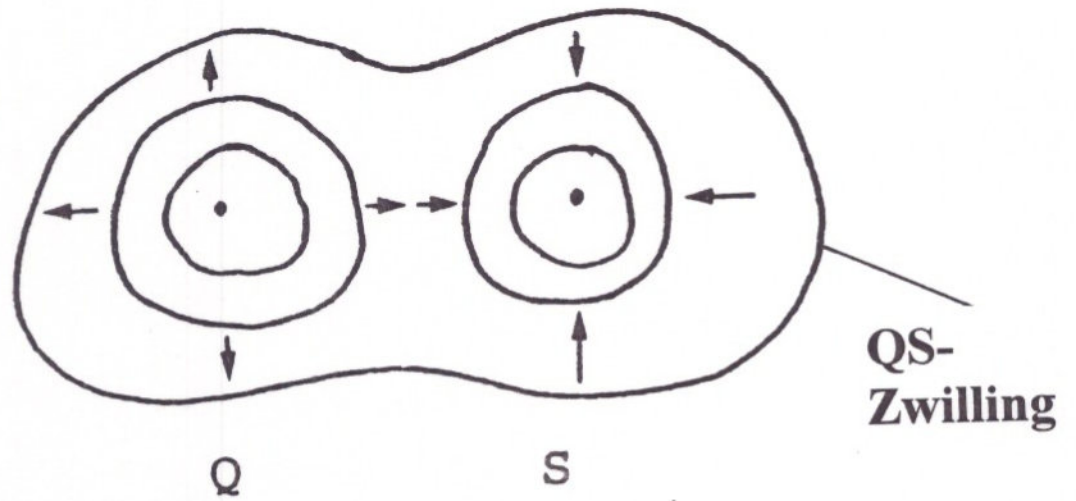


Quelle (Q)

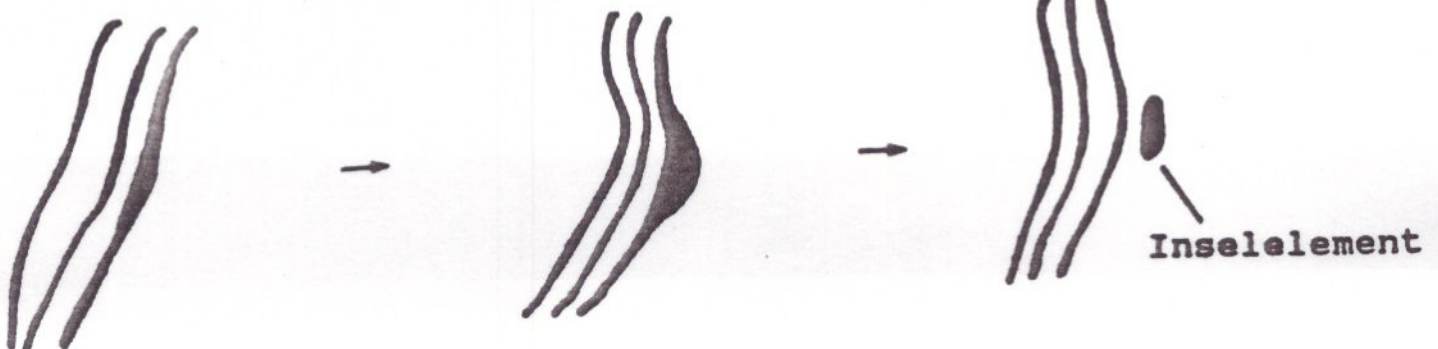
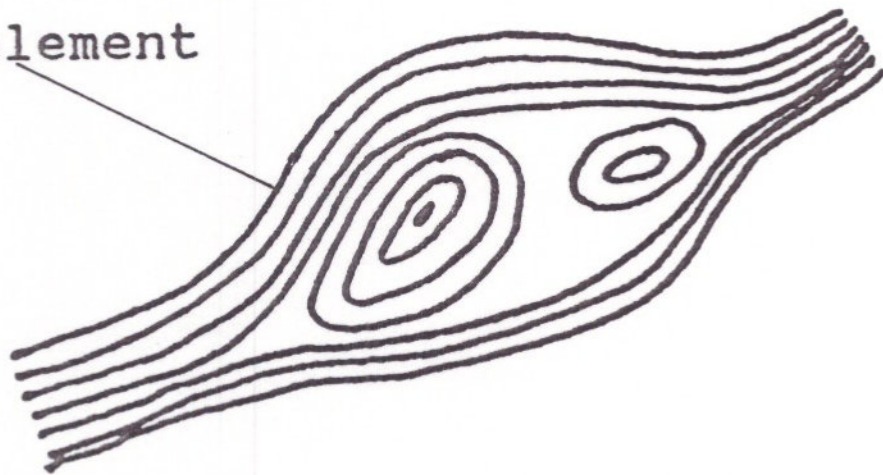


Senke (S)

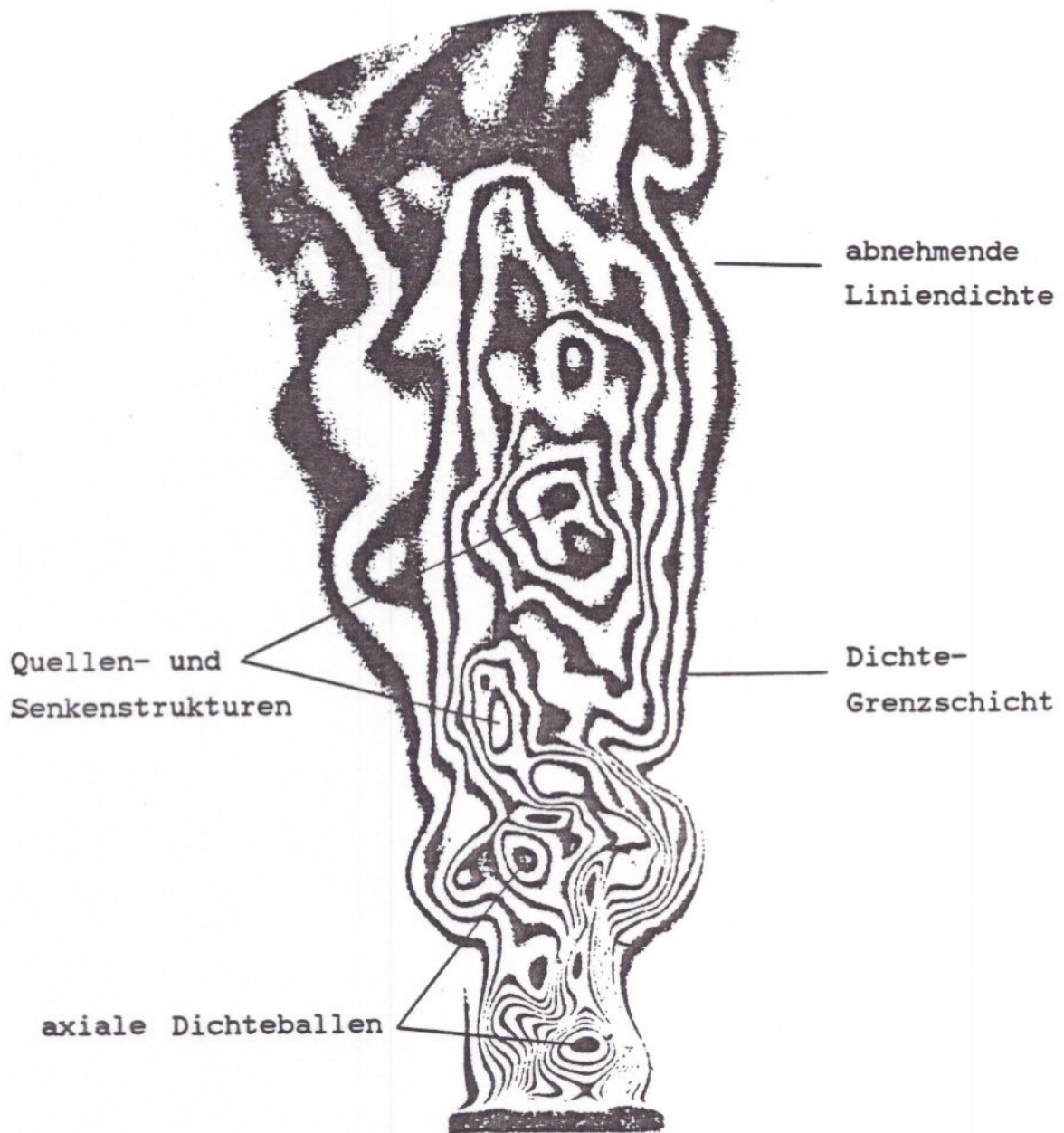
Strukturtypen



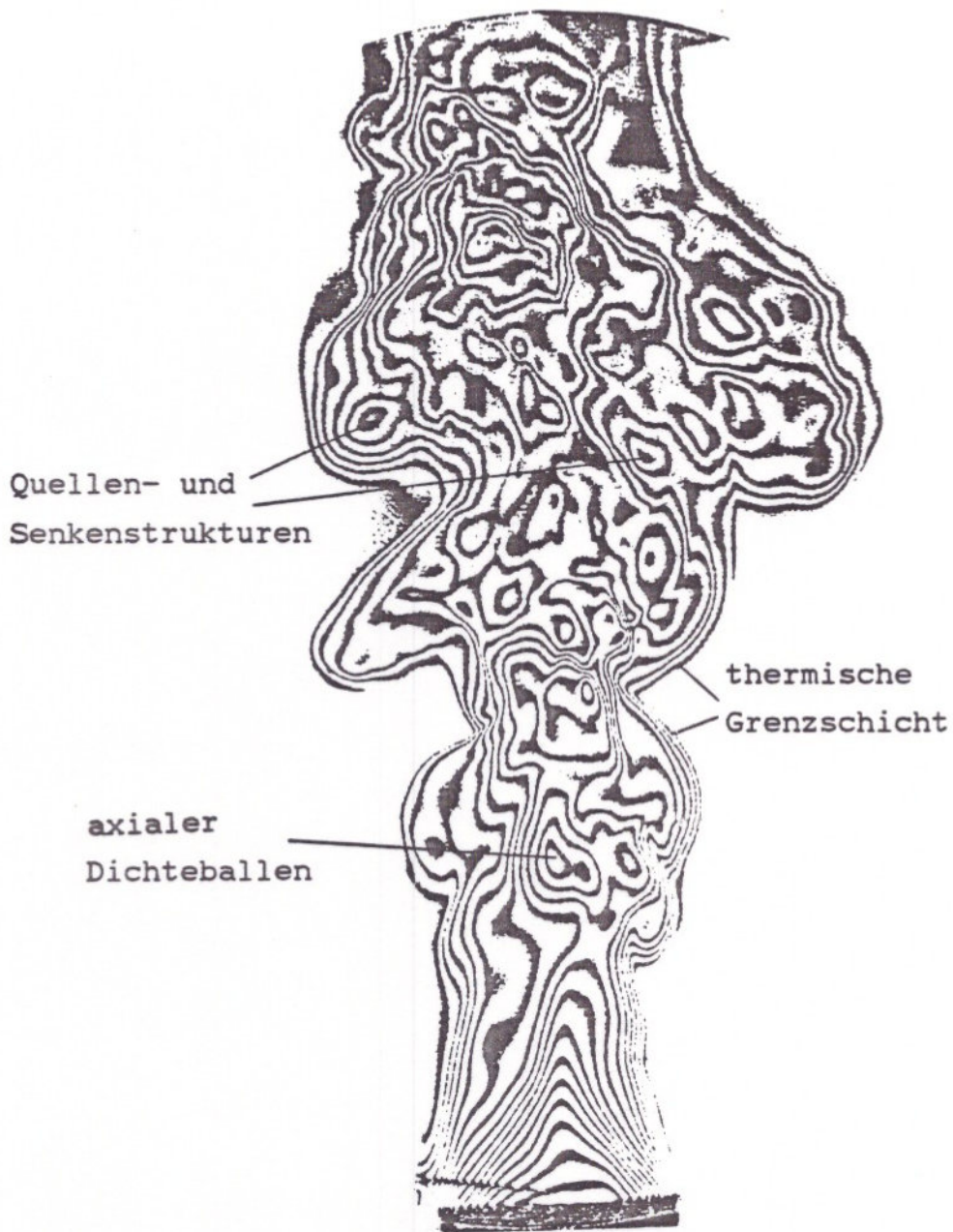
Bandelement



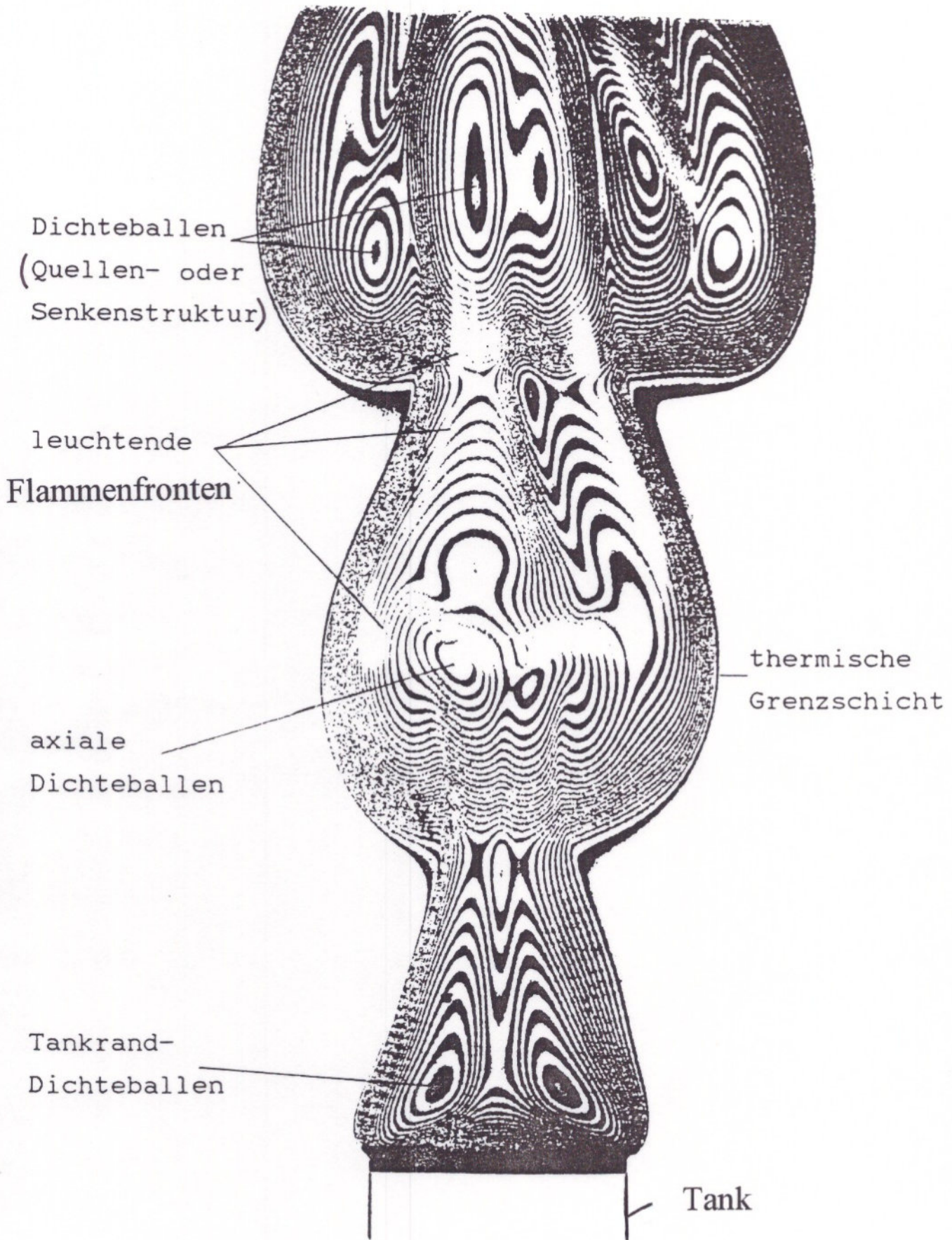
Inselement



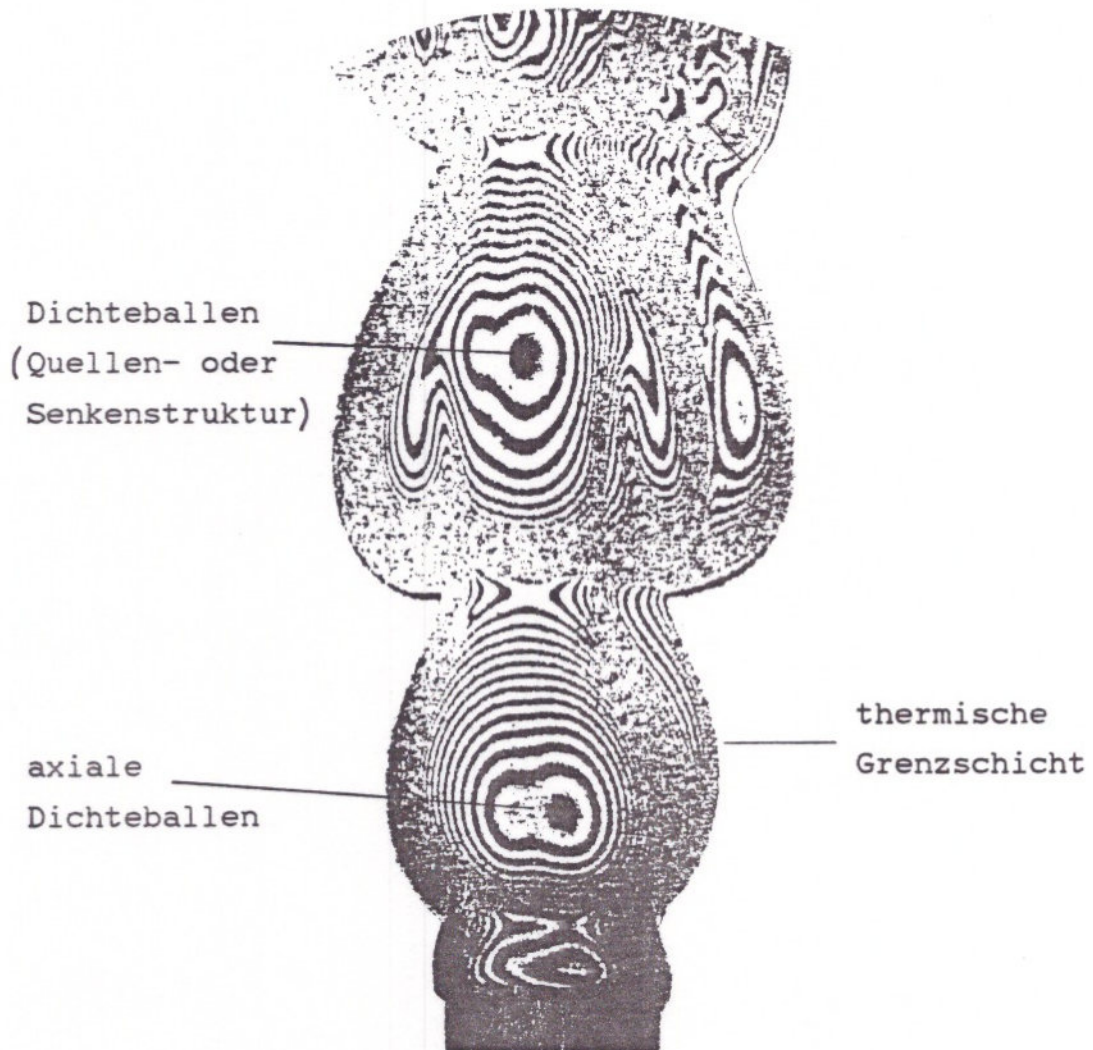
Kohärente Dichtestrukturen in einer Helium-Ausströmung
($d = 4.6 \text{ cm}$, $\dot{V} = 2.25 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$)



Kohärente Dichtestrukturen in einer Heißluft-Ausströmung
($d = 4.6 \text{ cm}$, $\dot{V} = 1.8 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$, $T = 950 \text{ K}$)



Kohärente Dichtestrukturen und VIS-Flammenfronten
in einer Methandiffusionsflamme
($d = 4.6 \text{ cm}$, $\dot{V} = 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$)



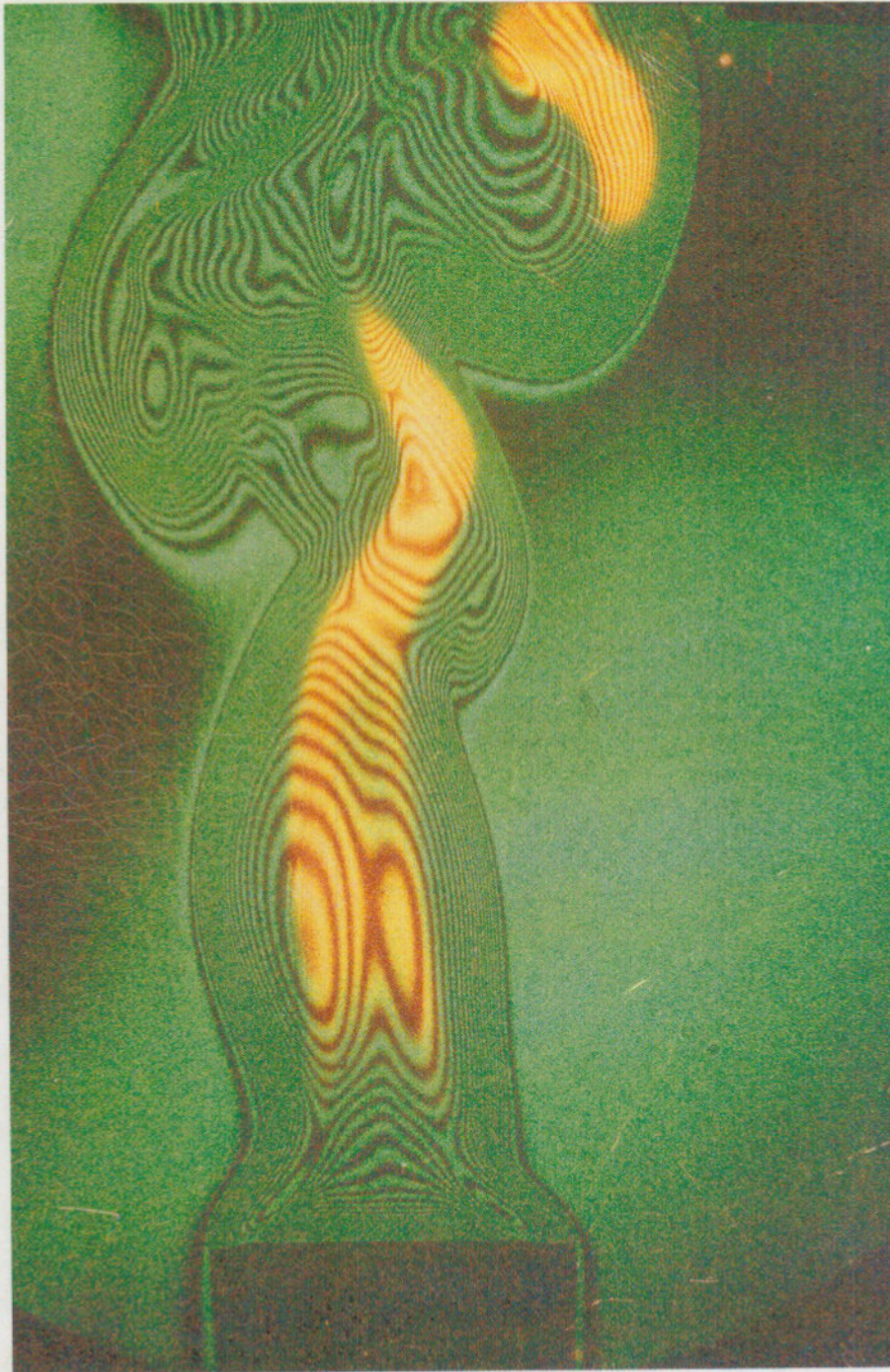
Kohärente Dichtestrukturen in einer Wasserstoffdiffusionsflamme
($d = 4.6 \text{ cm}$, $\dot{V} = 3.5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$)

3.3 Film: "Pool Flames, Dynamics of Dissipative Structures"

→ ausgewählte **Momentbilder**

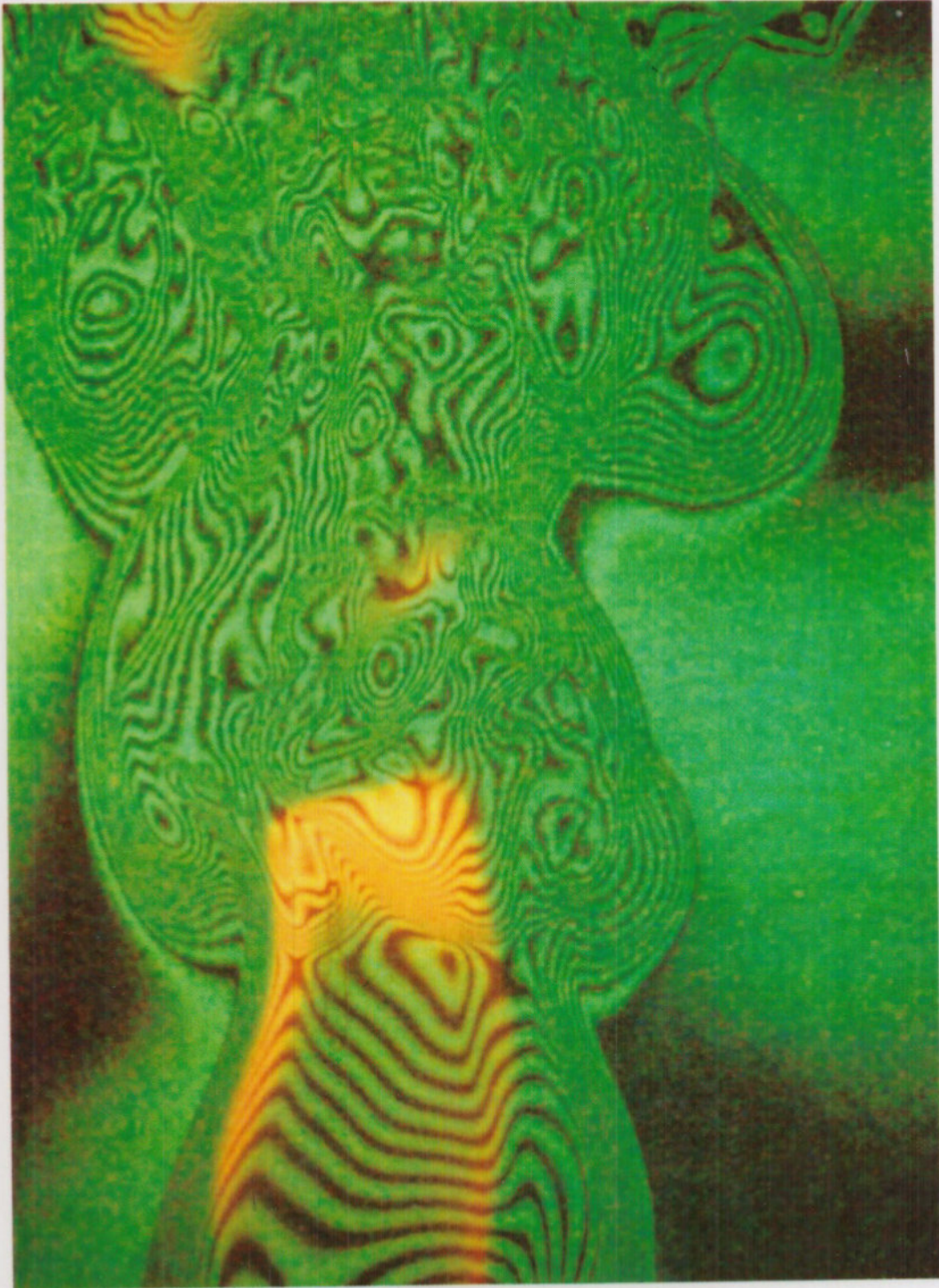
3.3 DVD-Video:

“Tank Flames, Dynamics of Dissipative Structures”



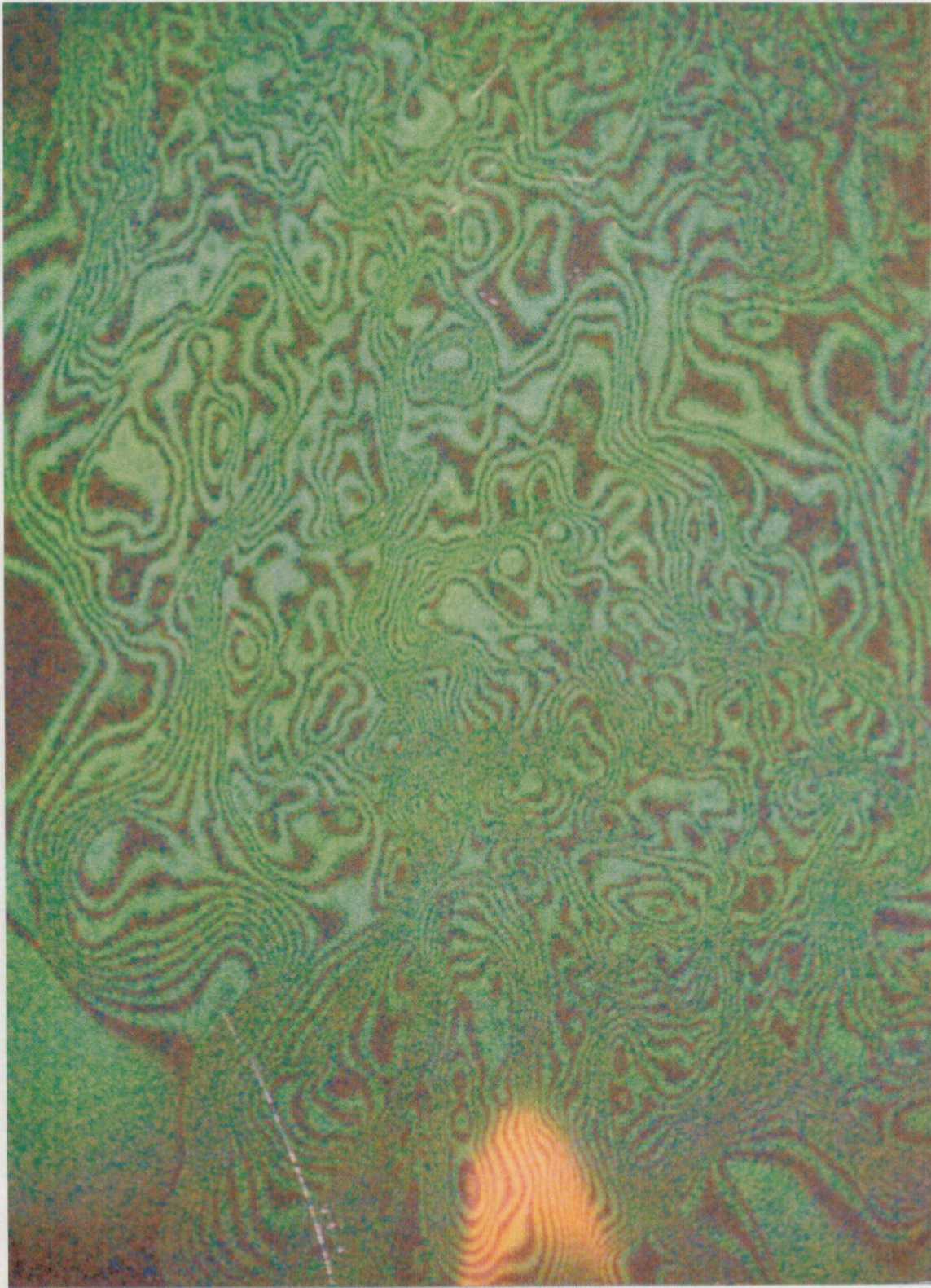
$H \gg \bar{H}$; $\bar{H}/d \approx 10-12$

n-hexane tank flame ($d = 4.6$ cm) : $0 < x < 25$ cm



n-hexane tank flame ($d = 4.6 \text{ cm}$) : $25 < x < 50 \text{ cm}$

8
4



n-hexane tank flame ($d = 4.6 \text{ cm}$) : $50 < x < 75 \text{ cm}$