



Doctoral Thesis

Katalytisch stabilisierte Verbrennung von Wasserstoff-Luft-Gemischen über Platin in laminaren und turbulenten Kanalströmungen

Author(s):

Appel, Christoph

Publication Date:

2002

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004379903> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH Nr. 14642

Katalytisch stabilisierte Verbrennung von Wasserstoff-Luft- Gemischen über Platin in laminaren und turbulenten Kanalströmungen

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels eines
Doktors der Technischen Wissenschaften

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE
ZÜRICH

vorgelegt von

CHRISTOPH APPEL

Dipl.Masch.Ing., Universität Stuttgart
geboren am 27. Oktober 1971
von Deutschland

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. A. Wokaun, Referent

Prof. Dr. K. Boulouchos, Korreferent

Dr. I. Mantzaras, Korreferent

Pd. Dr. O. Deutschmann, Korreferent

Zürich 2002

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird eine katalytisch stabilisierte Verbrennung („Catalytically Stabilized Thermal combustion“ - CST) von mageren H_2 -Luft-Gemischen über Platin bei laminaren und turbulenten Strömungsbedingungen untersucht. Die Untersuchung wird experimentell und numerisch bei atmosphärischem Druck durchgeführt. Das Ziel der Studie über laminare Strömungen ist die Validierung von verschiedenen Reaktionsmechanismen bezüglich der Prozesse in der Gasphase und an der katalytisch beschichteten Oberfläche. Mit den validierten Reaktionsmechanismen werden anschliessend turbulente Strömungen untersucht, um turbulente CST-Modelle zu validieren.

Experimente werden in einem Kanal durchgeführt, der aus zwei horizontalen, katalytisch beschichteten Keramikplatten und zwei Quarzfenstern aufgebaut ist. Die Quarzfenster ermöglichen einen optischen Zugang der Brennkammer. Der Eintrittsbereich der Brennkammer wird im Hinblick auf die hohe Reaktivität von Wasserstoff gekühlt, um die Zündung der Gasphase zu verzögern. Zur Bestimmung des Zündpunktes wird die Verteilung des OH-Radikals mit Hilfe von planarer laser-induzierter Fluoreszenz (PLIF) gemessen. Eindimensionale Raman-Messungen liefern die Profile von Temperatur bzw. Hauptspezies über die Kanalhöhe und Laser Doppler Anemometrie (LDA) die Geschwindigkeit bzw. Turbulenzintensität am Eintritt.

Die numerischen Berechnungen werden mit einem zweidimensionalen, elliptischen Simulationsprogramm durchgeführt. Dieses beinhaltet den Transport eines multikomponenten Gemisches und elementare Reaktionsmechanismen für die Gasphase (homogen) und die Oberfläche (heterogen). In dem ersten Teil dieser Arbeit werden anhand laminarer CST-Strömungen verschiedene elementare und reduzierte Reaktionsmechanismen für die Gasphase und die Oberfläche validiert, um den Zündpunkt der Gasphase vorhersagen zu können. Dabei werden vier elementare und drei reduzierte Reaktionsmechanismen für die Gasphase sowie drei elementare und ein reduzierter Mechanismus für die Oberfläche untersucht. Die Unterschiede zwischen experimentellen und berechneten Zündpunkten betragen in Abhängigkeit von den jeweiligen Mechanismen zwischen 8 % und 85 %. Die Unterschiede sind hauptsächlich auf den homogenen Mechanismus zurück zu führen. Sen-

sitivitätsanalysen zeigen, dass die Diskrepanz zwischen den elementaren Mechanismen für die Gasphase zum Einen durch das in Wandnähe vorhandene Wasser auftritt. Dieses wird auf der Oberfläche produziert und beeinflusst als Stosspartner die Kettenabbruchsreaktion $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} = \text{HO}_2 + \text{M}$. Zum Anderen entsteht der Unterschied durch den Radikalenpool, der im Bereich vor dem homogenen Zündpunkt unterschiedlich schnell bei den verschiedenen Mechanismen aufgebaut wird. Die elementaren Reaktionsmechanismen für die Oberfläche weisen bedeutende Unterschiede in der Oberflächenbedeckung und den Flüssen der Radikale auf. Ihr Einfluss auf den Zündpunkt der Gasphase ist jedoch gering, da sie alle den gemessenen diffusionslimitierten Brennstoffumsatz auf der Oberfläche korrekt vorhersagen. Weiterhin wird die homogene Zündung nur geringfügig von der Grösse der Radikal-Flüsse beeinflusst, wobei die Adsorptionsreaktionen aller Radikale (O, H und OH) in den Mechanismen berücksichtigt werden müssen. Die reduzierten Mechanismen für die Gasphase und die Oberfläche sagen den Zündpunkt der Gasphase nicht zufriedenstellend vorher.

In der Studie über turbulente CST-Strömungen werden die Reaktionsmechanismen, welche den homogenen Zündpunkt am besten vorhersagen, verwendet, um die kinetischen Unsicherheiten zu eliminieren und um den Einfluss verschiedener Turbulenzmodelle bei CST-Strömungen zu untersuchen. Hierzu werden drei „low Reynolds number“ $k-\varepsilon$ Turbulenzmodelle in Verbindung mit einem thermochemischen Modell verwendet. Letzteres berechnet die katalytischen Reaktionsraten durch eine laminar-ähnliche Schliessung und die mittleren Reaktionsraten in der Gasphase durch die Annahme einer Gauss'schen Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion. Der Vergleich zwischen Experiment und Simulation zeigt, dass CST-relevante Phänomene sehr stark von dem jeweils verwendeten Turbulenzmodell abhängen. Darüberhinaus existiert eine grosse Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment, wenn das Turbulenzmodell die starke Laminarisierung der Strömung nicht erfassen kann. In diesem Teil der Arbeit wird als Ergebnis dieses Vergleichs ein Turbulenzmodell präsentiert, das für turbulente CST-Strömungen besonders geeignet ist. Experimente und Berechnungen belegen, dass ein kontinuierlicher Anstieg des turbulenten Transports zu einer unvollständigen Verbrennung in der Gasphase führt. Dadurch tritt ein Sickern des Brennstoffes durch die Verbrennungszone zur Wand hin auf, dem eine heterogene Brennstoffumsetzung folgt und welches die homogene Flamme auslöschen kann. Weitere Berechnungen ergeben, dass die Turbulenz die Zündung der Gasphase verzögert. Dies ist auf den erhöhten Wärmetransport aus dem wandnahen Bereich in Richtung Kanalmitte zurückzuführen. Letztendlich wird gezeigt, dass das thermochemische Modell bei turbulenten CST-Strömungen sehr geeignet ist.

Abstract

The catalytically stabilized thermal combustion (CST) of fuel-lean H_2 -air premixtures over platinum is investigated experimentally and numerically in laminar and turbulent channel-flow configurations. The objective in the first part of this work is the validation of various homogeneous (gas-phase) and heterogeneous (catalytic) chemical reaction schemes for H_2 over platinum with the aid of laminar CST-flows. The validated chemical schemes are, in turn, used in the second part of the work to assess turbulent CST models.

Experiments are performed in an optically-accessible catalytic channel-reactor, comprised of two Pt-coated ceramic plates, locally-cooled to suppress hot-spot formation. Planar laser induced fluorescence (PLIF) of the OH radical along the streamwise plane of symmetry is used to monitor the onset of homogeneous ignition. One-dimensional Raman measurements (across the channel height) provide the boundary layer profiles of the major species and temperature. Laser Doppler Anemometry (LDA) yields the inlet velocity and its fluctuations (turbulent case only), and thermocouples embedded beneath the catalyst monitor the surface temperature distribution.

Computations are carried out using a two-dimensional elliptic fluid mechanical code that includes multicomponent transport, elementary homogeneous and heterogeneous chemical reaction schemes. In the laminar part of this work various elementary and reduced hetero-/homogeneous reaction schemes are validated in their capability to reproduce measured homogeneous ignition characteristics. Four elementary and three reduced homogeneous reaction schemes are tested, in conjunction with three elementary and one reduced heterogeneous scheme. The differences between measured and predicted homogeneous ignition distances are substantial (ranging from 8% to 85%, depending on the particular hetero-/homogeneous schemes) and are ascribed mainly to the homogeneous reaction pathway. Sensitivity analysis indicates that the discrepancies induced by the gas-phase schemes originate either from the presence of heterogeneously-produced water due to its effectiveness as collision partner in the chain terminating reaction $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} = \text{HO}_2 + \text{M}$, or from an overall overprediction of the radical pool in the preignition zone. The elementary heterogeneous schemes had significant differ-

ences in their surface coverage and radical fluxes, but these variations had practically no impact on homogeneous ignition. Sensitivity and reaction flux analyses show that this is attributed to the ability of all heterogeneous schemes to capture the measured mass-transport-limited fuel conversion and to the relative insensitivity of homogeneous ignition on the magnitude of the heterogeneous radical fluxes, provided that all radical adsorption reactions (O, H and OH) are included in the heterogeneous schemes. The reduced schemes and the global steps for the gaseous and the catalytic pathway could not reproduce the measured onset of homogeneous ignition.

In the study of turbulent CST-flows, the validated hetero-/homogeneous schemes from the laminar work are used for the numerical model in order to eliminate kinetic ambiguities and, thus, draw conclusions on the CST-applicability of various turbulent models. Three different low Reynolds number turbulence models are examined, in conjunction with a thermochemistry model that includes a laminar-like closure for catalytic reactions and a presumed-shape (Gaussian) probability density function approach for the gaseous reactions. Comparisons between predictions and measurements show that key CST issues, such as catalytic fuel conversion and onset of homogeneous ignition, are strongly dependent on the particular turbulence model. Moreover, the discrepancies between predictions and measurements are ascribed to the capacity of the various turbulence models to capture the strong flow laminarization induced by the heat transfer from the hot catalytic surfaces. A turbulence model that yields good agreement with the measurements is presented as particularly suited for CST applications. Experiments and predictions show that a continuous increase of the turbulent transport leads to incomplete combustion through the gaseous reaction zone with subsequent catalytic conversion of the leaked fuel and, finally, to extinction of the gaseous flame. Comparison between turbulent and laminar flows having the same incoming properties shows that turbulence inhibits homogeneous ignition due to increased heat transport away from the near-wall layer. Finally, it is demonstrated that the adopted thermochemical model predicts successfully homogeneous ignition in turbulent CST-flows.