

Lehrstuhl für Thermodynamik
Technische Universität München

Brennverhalten schallnaher und überschall-schneller Wasserstoff-Luft Flammen

Andreas Eder

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Maschinenwesen
der

Technischen Universität München

zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR – INGENIEURS

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender:

Univ.-Prof. Dr.-Ing. H.-P. Kau

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr.-Ing., Dr.-Ing. E.h.

F. Mayinger, emeritiert

2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. D. Brüggemann

Universität Bayreuth

3. Univ.-Prof. Dr.-Ing., Dr.-Ing. habil. R. Schilling

Die Dissertation wurde am 19.01.2001
bei der Technischen Universität München eingereicht und durch
die Fakultät für Maschinenwesen am 04.05.2001 angenommen.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand am [Lehrstuhl für Thermodynamik](#) der Technischen Universität München.

Meinem sehr verehrten Lehrer, [Herrn Professor em. Dr.-Ing. Dr.-Ing. E.h. F. Mayinger](#), gilt mein besonderer Dank für die intensive Betreuung meiner Arbeit, das Vertrauen, das mit seinem stets regen Interesse am Fortgang meiner Arbeit verbunden war sowie die zahlreichen richtungsweisenden Gespräche, die oft weit über rein fachliche Inhalte hinaus gingen und mir eine wertvolle Hilfe waren.

Herrn Professor Dr.-Ing. D. Brüggemann und Herrn Professor Dr.-Ing. Dr.-Ing. habil. R. Schilling danke ich für die freundliche Übernahme des Ko-referates und Herrn Professor Dr.-Ing. H.-P. Kau für den Vorsitz bei der mündlichen Prüfung.

Mein Dank geht auch an alle Kolleginnen und Kollegen des Lehrstuhls sowie meinen Studenten und Hilfskräften, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt dabei meinem Kollegen Herrn Dipl.-phys. Christof Gerlach für die hervorragende und konstruktive Kooperation bei der Bearbeitung des gemeinsamen Forschungsprojektes. Das Gelingen der Arbeit war geprägt durch die ausgezeichnete Zusammenarbeit und die intensiven Diskussionen innerhalb der Verbrennergruppe des Lehrstuhls. Exemplarisch sei hier Herr Dr.-Ing. Nikolai Ardey, Herr Dr.-Ing. Martin Jordan und Herr Dr.-Ing. Dipl.-phys. Peter Prechtel gedankt. Herrn Dr.-Ing. Bodo Durst gilt dabei mein spezieller Dank für die Unterstützung bei der Durchsicht meiner Arbeit.

Ganz herzlich bedanken möchte ich mich auch bei meinen Eltern, die mir durch ihre Unterstützung in allen Phasen meiner Ausbildung den nötigen Rückhalt gaben.

Diese Arbeit entstand im Rahmen eines, durch das [BMW](#) über die Gesellschaft für [Anlagen- und Reaktorsicherheit \(GRS\)](#) geförderten Forschungsvorhabens, für deren Unterstützung und Betreuung ich mich ebenfalls bedanke.

München, im Juni 2001

Andreas Eder

Inhaltsverzeichnis

Formelzeichen	iv
1 Einleitung	1
2 Ausbreitung vorgemischter Flammen in geschlossenen Behältern	5
2.1 Physikalische und chemische Grundbegriffe der Verbrennung	5
2.1.1 Deflagration, Detonation und Explosion	6
2.1.2 Reaktionsfrontgleichungen	7
2.2 Deflagrative Mechanismen der Flammenausbreitung	11
2.2.1 Laminare und turbulente Flammen	11
2.2.2 Mechanismen der Flammenbeschleunigung	20
2.2.3 Schallnahe Deflagration	28
2.3 Detonative Mechanismen der Flammenausbreitung	32
2.3.1 Eindimensionale Detonationstheorien und ihre Anwendung	32
2.3.1.1 Das Modell von Chapman und Jouguet . .	32
2.3.1.2 Das Modell von Zel'dovich, von Neumann und Döring	34
2.3.2 Zellulare Detonationsstruktur	40
2.3.3 Arten und Grenzen der Detonationsausbreitung in geschlossenen Behältern	47
2.4 Übergang von der Deflagration zur Detonation (DDT) . .	51
2.4.1 Übergangsmechanismen	51
2.4.2 Kriterien für den DDT durch Flammenbeschleunigung	55

3	Beschreibung der Versuchsanlage und Versuchsmatrix	58
4	Messtechnik	64
4.1	Konventionelle Messtechnik	65
4.2	Optische Messtechnik	69
4.2.1	Schlierenphotographie	69
4.2.2	Planare Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz	71
5	Ergebnisse der Versuche	78
5.1	Schallnahe Deflagration, Detonation und DDT in Wasserstoff-Luft Gemischen	78
5.1.1	Flammenausbreitung in der Hindernisstrecke	81
5.1.2	Brennregime induziert durch periodische Hindernisse	84
5.1.3	Untersuchung der Flammenstruktur	103
5.1.3.1	Schallnahe Deflagration	104
5.1.3.2	Detonationen in Gemischen mit $\lambda \geq D$	105
5.1.3.3	Detonationen in Gemischen mit $\lambda < D$	114
5.1.3.4	Flammenstrukturen am Ende der Hinder- nistrecke	116
5.1.4	Mechanismen der Detonationsentstehung ohne Hin- derniseinfluss	120
5.1.5	Druckentwicklung	128
5.1.6	Untersuchung von Wandwärmeströmen von Defla- gationen und Detonationen	140
5.1.7	Zusammenfassende Darstellung der Erkenntnisse zum Brennverhalten vorgemischter Wasserstoff-Luft Flammen	143

5.2	Einfluss des thermodynamischen Anfangszustands auf den DDT	146
5.3	Einfluss von Additiven auf den DDT in Wasserstoff-Luft Gemischen	149
5.3.1	Einfluss von Wasserdampf und Kohlendioxid	150
5.3.2	Einfluss von Kohlenmonoxid	154
5.4	DDT in Hythane-Gemischen	157
6	Zusammenfassung	162
	Literatur	165
A	Detonationszellweiten	180
B	Umrechnung Stöchiometrieverhältnis-Volumenanteil	183
B.1	Wasserstoff-Luft Gemische	183
B.2	Hythane-Gemische	184
B.3	H ₂ -CO-Luft Gemische	184
B.4	H ₂ -CO ₂ -Luft und H ₂ -H ₂ O-Luft Gemische	185

Formelzeichen

Zeichen	Bezeichnung
---------	-------------

Skalare Größen

a	Schallgeschwindigkeit
A	Querschnittsfläche
A	elektronischer Zustand
A_{21}	Einsteinkoeffizient für spontane Emission
B	Kanalbreite
B_{12}	Einsteinkoeffizient für Photonen-Absorption
c	Lichtgeschwindigkeit
c_p	Wärmekapazität bei konstantem Druck
D	Allgemeine Diffusivität
D	Rohrdurchmesser
d	Offener Blendendurchmesser
E	Aktivierungsenergie
h	Spezifische Enthalpie
H	Totalenthalpie
H	Kanalhöhe
I	Impuls
I_v	spektrale Energiedichte des Lasers
k	Rotationsquantenzahl
l_s	Turbulentes Mikromaß
l_{SP}	Abstand zwischen Hindernissen
L	Turbulentes integrales Längenmaß
L_{OP}	Länge der Hindernisstrecke
n	Anzahl der Photonen
N_{ges}	Gesamtteilchenzahl
p	Druck
P	Prädissoziationsrate
q	Spezifische Reaktionswärme
Q	Dimensionslose Wärmezufuhr
Q_{21}	Quenching Koeffizient
R	Gaskonstante
s_l	laminare Brenngeschwindigkeit

s_t	turbulente Brenngeschwindigkeit
S_F	Fluoreszenzintensität
t	Zeit
T	Temperatur
u	allgemeine Geschwindigkeit
u_{CJ}	Detonationsgeschwindigkeit
u, U	Strömungsgeschwindigkeit
u_B	allgemeine Brenngeschwindigkeit
u_F	Flammenausbreitungsgeschwindigkeit
V	Volumen
x, y, z	allgemeine Koordinaten

Griechische Symbole

α	Wärmeübergangskoeffizient
β	Zel'dovich Zahl
δ	Abstand zwischen Stoßwelle und Flamme
δ_l	laminare Flammendicke
δ_{ph}	Dicke der Vorwärmzone
δ_r	Dicke der Reaktionszone
Δ	Reaktionszonenlänge
ε	Dissipationsrate der turbulenten kinetischen Energie
γ	Molenbruch, Spezieskonzentration
κ	Isentropenexponent
λ	Detonationszellweite
λ	Wärmeleitfähigkeit
λ	Wellenlänge
ν	kinematische Viskosität
ν	Wellenzahl des Lichtes
ρ	Dichte
σ	Expansionsverhältnis
τ	allgemeines Zeitmaß
τ_c	chemische Reaktionszeit
θ	Aktivierungsparameter
Φ	Stöchiometrieverhältnis
Σ, X, Π	elektronische Zustände
ω	Reaktionsrate

Indizes

<i>i</i>	Auf Induktionszustand bezogen
<i>CJ</i>	Auf Chapman-Jouguet Zustand bezogen
<i>PS</i>	Auf den Zustand hinter dem Stoß (<i>Post Shock</i>) bezogen
<i>r</i>	Auf Reaktion bezogen
<i>RS</i>	Auf den Zustand hinter dem reflektierten Stoß bezogen
<i>rms</i>	Standartabweichung (<i>root-mean-square</i>)
<i>S</i>	Stoß
<i>VN</i>	Auf von Neumann Zustand bezogen

Kennzahlen

Da	Damköhlerzahl
K	Flammenstreckungsfaktor
Ka	Karlovitzzahl
Le	Lewiszahl
Pr	Prandtlzahl
Re	Reynoldszahl
Ma	Machzahl
Tu	Turbulenzgrad

Konstanten

R_m	allgemeine (molare) Gaskonstante
-------	----------------------------------

Abkürzungen

CG	Craven-Greig
BR	Blockierrate
CCD	Charged-Coupled-Device
CJ	Chapman-Jouguet
CV	Konstantes Volumen
LDA	Laser-Doppler-Anemometrie
LIF	Laser-induzierte Fluoreszenz
LIPF	Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz
PLIPF	Planare Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz
SNR	Signal-Rausch Verhältnis
VN	von Neumann
ZND	Zel'dovich, von Neumann und Döring

1 Einleitung

Die chemische Energieumwandlung von Brennstoffen in Wärme spielt die zentrale Rolle beim Fortschritt der Gesellschaft. Der technischen Anwendung, wie z.B. dem Antrieb von Fahrzeugen oder der Gewinnung von Elektrizität, steht das Sicherheitsrisiko gegenüber, das jeder Energieträger durch die spezielle Art seiner Anwendung bei störfallbedingten Unfallszenarien beinhaltet. Gerade bei gasförmigen Brennstoffen ist dieses Sicherheitsrisiko nur schwer zu kalkulieren, da freigesetzte Brenngase mit dem in der Luft enthaltenen Sauerstoff eine explosionsfähige Gemischwolke bilden können. Kommt es in einem geschlossenen Gebäude zu einer Zündung eines derartigen vorgemischten Brennstoff-Luft Gemisches, so kann die mit dem Verbrennungsprozess verbundene Druck- und Temperaturentwicklung zu einer starken Gefährdung der Integrität des Gebäudes führen.

Die Druckentwicklung eines Verbrennungsprozesses ist direkt an die Geschwindigkeit des Verbrennungsablaufes gekoppelt. Verbrennt das Brennstoff-Luft Gemisch langsam – auch langsame Deflagration genannt –, so stellt die Druckentwicklung eine beherrschbare Belastung dar. Flammenfronten können sich in das brennbare Gemisch jedoch auch mit einer Geschwindigkeit von mehreren hundert bis zu über tausend Meter pro Sekunde hineinbewegen. In diesen Fällen breitet sich die Flamme als schnelle Deflagration oder auch als Detonation aus. Die durch eine derartige schnelle Energieumsetzung entstehende Druckerhöhung kann von keiner herkömmlichen Gebäudestruktur aufgenommen werden.

Die Energie der in einem Störfallszenario möglichen Zündquellen reicht in der Regel nicht aus, eine schnelle Deflagration oder Detonation direkt zu zünden. Jedoch kann eine deflagrative Verbrennung – z.B. durch eine starke turbulente Flammenbeschleunigung – in eine Detonation übergehen, man spricht in diesem Fall von *Deflagration-to-Detonation Transition, DDT*. Weitere Übergangsmechanismen sind die detonative Zündung eines Gemisches durch Fokussierung von Stoßwellen, die der deflagrativen Flammenfront vorauslaufen, sowie eine volumetrische Zündung eines Gemischbereichs infolge einer Wiederzündung turbulenter Löschgebiete hinter Hindernissen mit einer hohen Querschnittsblockierung im Weg der deflagrativen Flamme (“Hot-Jet Ignition”).

Bei dem Übergang von der Deflagration in die Detonation durch eine turbulente Flammenbeschleunigung, was Gegenstand der Untersuchungen im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit war, geht man davon aus, dass sich durch die Expansion des heißen, verbrannten Gases vor der deflagrativen Flamme ein Strömungsfeld ausbildet, das z.B. durch die Umströmung von Gegenständen in einem Gebäude hochturbulent sein kann. Durch die Turbulenz wird der Wärme- und Stofftransport zwischen verbrannten und unverbrannten Gemisch erhöht. Zusätzlich wird durch die Wechselwirkung zwischen Flamme und Turbulenz die Flammenoberfläche vergrößert, woraus eine höhere effektive Reaktionsrate resultiert. Diese kann zu einer erheblichen Beschleunigung der Flammenfront auf Geschwindigkeiten führen, bei welchen ein DDT-Prozess eintreten kann.

Für die Vorhersage des Ablaufs bzw. der Auswirkungen eines Unfallablaufs ist die Kenntnis, ob eine deflagrative Verbrennung in eine Detonation übergehen kann, von essentieller Bedeutung. Verbrennungsabläufe von reinen Deflagrationen und Detonationen können mit den heute zur Verfügung stehenden numerischen Simulationswerkzeugen mit hinreichender Genauigkeit vorhergesagt werden. Gerade jedoch der Übergang von der Deflagration in die Detonation stellt an die numerische Modellierung höchste Ansprüche (vgl. [BCD⁺00]). Eine Simulation in technisch relevanten Geometrien ist sowohl durch die Limitierung an Computerressourcen als auch durch die Komplexität der dabei auftretenden physikalischen Phänomene nicht möglich. Um dennoch eine Simulation eines Unfallablaufs durchführen zu können, sind Kriterien erforderlich, anhand derer entschieden werden kann, ob aufgrund der momentanen Phase der Flammenausbreitung weiterhin ein numerischer Code zur Simulation von Deflagrationen verwendet werden kann oder die Berechnung mit einem Code zur Simulation von Detonationen fortgesetzt werden muss.

Aus diesem Grund wurden im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit Untersuchungen durchgeführt, deren Ziel darin bestand, die Mechanismen, die zum Übergang einer deflagrativen Flamme in eine Detonation infolge einer turbulenten Flammenbeschleunigung führen, detailliert zu studieren und auf dieser Basis eine Abgrenzung für das Auftreten dieser grundlegend unterschiedlichen Verbrennungsarten aufzuzeigen. Dazu wurden Experimente in einem Explosionsrohr mit (laser-)optischen Messtechniken durchgeführt,

um die lokalen Bedingungen bei der Entstehung eines DDT berührungs- und trägheitslos erfassen zu können. Die mit diesen Messungen erzielten Ergebnisse können als Kriterien im Rahmen der numerischen Modellierung hochtransienter Verbrennungsvorgänge eingesetzt werden.

Als Brennstoff für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Verbrennungsphänomene wurde bei den meisten Experimenten Wasserstoff verwendet. Der Energieträger Wasserstoff hat das größte Potential, die anstehenden Probleme der Energieversorgung einer stark wachsenden Weltbevölkerung wirtschaftlich und gleichzeitig umweltfreundlich zu lösen. Für eine zukünftige Infrastruktur für die Lagerung und die Verteilung von Wasserstoff müssen sicherheitstechnische Fragestellungen bei der Planung berücksichtigt werden, um potentielle Gefahrenquellen bei hypothetischen Störfällen insoweit auszuschließen, dass bei einer Wasserstofffreisetzung keine Detonationen entstehen. Als Übergang in eine zukünftige Wasserstoffwirtschaft wird auch die Möglichkeit diskutiert, dem etablierten Energieträger Erdgas Wasserstoff beizumengen, um Erfahrungen in dem Umgang mit Wasserstoff als Energieträger im privaten Bereich zu sammeln, sowie die Kohlendioxidemissionen zu mindern. Aus diesem Grund wurde im Rahmen dieser Arbeit der Übergang von einer Deflagration in eine Detonation auch in diesen sogenannten "Hythane-Gemischen" (Wasserstoff/Methan/Luft-Gemische) untersucht.

Hinzukommt, dass Wasserstoff im Zusammenhang mit sicherheitstechnischen Überlegungen für kerntechnische Anlagen große Bedeutung hat. Im Verlauf eines hypothetischen, auslegungsüberschreitenden Störfalls in einem Leichtwasserreaktor kann es in einem Fall des Abschmelzens des Reaktorkerns durch eine Zirkoniumoxidation und durch eine Wechselwirkung von Schmelze und Beton zu einer Freisetzung von Wasserstoff kommen, der in Verbindung mit der Luft im Sicherheitsbehälter ein zündfähiges Gemisch bilden kann. Während der mit langsamen Deflagrationen verbundene Druckanstieg kein nennenswertes Gefährdungspotential für den Sicherheitsbehälter darstellt, können schnelle Deflagrationen und Detonationen die Integrität des Sicherheitsbehälters stark gefährden.

Bei auslegungsüberschreitenden Störfällen werden neben dem Wasserstoff eine Reihe weiterer gasförmiger Stoffe freigesetzt. Dies sind in kerntechnischen Anlagen insbesondere Wasserdampf sowie durch die Schmelze-Beton

Wechselwirkung auch Kohlendioxid und Kohlenmonoxid. Der inhibitorische Einfluss von Wasserdampf auf den Übergang von der Deflagration in die Detonation wurde bereits von Brehm [Bre87] eingehend untersucht. Weniger bekannt und verstanden ist hingegen der Einfluss von Kohlendioxid und Kohlenmonoxid. Aus diesem Grund ist es für eine sicherheitstechnische Beurteilung zwingend erforderlich, auch für diese Gemische Kriterien für den Übergang von der Deflagration in die Detonation aufzustellen.

2 Ausbreitung vorgemischter Flammen in geschlossenen Behältern

Die Verbrennung eines homogenen Brennstoff-Luft Gemisches in einem geschlossenen Behälter kann nach unterschiedlichen Mechanismen ablaufen. Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchte Phänomen des Übergangs von der Deflagration in die Detonation erfordert ein detailliertes Grundverständnis von nahezu allen gasdynamischen, fluiddynamischen und reaktionskinetischen Mechanismen, die physikalisch in einem geschlossenen Behälter, wie z.B. einem an beiden Enden geschlossenen Rohr, auftreten können. Hierzu kann auf eine breite Literaturbasis zurückgegriffen werden, die eine Grundlage für die Interpretation der in Kapitel 5 beschriebenen, experimentellen Untersuchungen darstellt. Im Vorgriff auf die im Rahmen dieser Arbeit dargestellten Ergebnisse sind aus Gründen der Anschaulichkeit in dieses Kapitel bereits einige Versuchsergebnisse der Flammenvisualisierung einbezogen. Die ihnen zugrundeliegende Messtechnik ist im Kapitel 4 erläutert.

2.1 Physikalische und chemische Grundbegriffe der Verbrennung

Bei der Reaktion von Brennstoff und Oxidationsmittel (normalerweise Luft) muss zwischen zwei grundlegenden Verbrennungsarten unterschieden werden. Diese Unterscheidung hängt davon ab, ob die Reaktionspartner gemischt oder getrennt voneinander vorliegen. Bei der *nicht-vorgemischten* Verbrennung (auch Diffusionsverbrennung genannt) laufen Mischung und Verbrennung gleichzeitig nebeneinander ab. Die Flammenfronten von nicht-vorgemischten Flammen sind sehr komplex, da sich im Mischungsgebiet ein Spektrum von unter- und überstöchiometrischen Bereichen findet. Auf der Brennstoffseite liegt eine überstöchiometrische Verbrennung, auf der Seite des Oxidationsmittels eine unterstöchiometrische Verbrennung vor. In der technische Anwendung finden sich nicht-vorgemischte Verbrennungen z.B. in direkteinspritzenden Verbrennungskraftmaschinen oder auch in Flugzeugturbinen.

Bei der *vorgemischten Verbrennung*, die im Rahmen dieser Arbeit für gasförmige Brennstoffe behandelt wird, werden Brennstoff und Oxidationsmittel vor der Zündung des Gemisches vollständig durchmischt, d.h. es liegt ein homogenes Gemisch vor. Vorgemischte Verbrennungsabläufe können von Seite eines außenstehenden Betrachters (Eulersche Betrachtungsweise) sowohl stationär (z.B. stationäre Gasturbine) als auch instationär sein. Für den instationären Verbrennungsablauf unterscheidet man Deflagrationen, Detonationen und Explosionen.

2.1.1 Deflagration, Detonation und Explosion

Unter den Begriff *Deflagration* fallen alle Verbrennungsprozesse, die sich durch Wärme- und Stoffübertragungsmechanismen ausbreiten. Eine deflagrative Verbrennung ist zwar von Stoßwellen beeinflussbar, jedoch nicht induzierbar. Durch Strahlung, Wärmeleitung und Diffusion heißer, reagierender Bestandteile aus der Flammenfront wird das vor der Flammenfront liegende, unverbrannte Frischgas auf die erforderliche Reaktionstemperatur erwärmt. Die Flammenfront selbst breitet sich mit ihrer Brenngeschwindigkeit u_B aus, die relativ zu dem unverbrannten Gemisch unmittelbar vor der Flamme stets kleiner als die Schallgeschwindigkeit ist. Dabei ist zu beachten, dass sich das Gas vor der Flamme aufgrund der von ihr induzierten Expansionsströmung selbst in Richtung der Flammenausbreitung mit der Geschwindigkeit U bewegt. Daher können sich Störungen, die an der Flammenfront entstehen, schneller als die Flammenfront fortpflanzen und somit Einfluss auf das Gemisch nehmen, in das sich die Flamme hineinbewegt. Dadurch ist absolut gesehen ein breites Spektrum von Flammenausbreitungsgeschwindigkeiten u_F – von einigen m/s bis in den Überschallbereich bezogen auf den Zustand des ruhenden Frischgasgemisches – möglich. Es gilt stets:

$$u_F = u_B + U . \quad (2.1)$$

Eine *Detonation* unterscheidet sich grundsätzlich in ihrem Ausbreitungsmechanismus von einer Deflagration. Die Zündung des Gemisches erfolgt durch Aufheizung und Kompression des Brennstoff-Luft Gemisches über die Selbstzündbedingungen hinaus in einem Verdichtungsstoß, der unmit-

telbar der Flamme voranläuft. Dabei sind Stoß- und Flammenfront eng miteinander gekoppelt, d.h. die Stoßwellen induzieren einerseits die chemische Reaktion, welche andererseits durch die Energiefreisetzung für die Aufrechterhaltung des komplexen Stoßwellensystems erforderlich ist. Dieses System bewegt sich stets mit Überschallgeschwindigkeit in das unverbrannte, ruhende Gemisch hinein. Aus Stabilitätsgründen bilden sich neben der longitudinal verlaufenden Stoßwelle noch transversale Stoßwellen aus. Die Zeitspanne zwischen der Stoßkompression, d.h. dem Erreichen der Selbstzündbedingungen und dem tatsächlichen Zünden der Reaktionsfront, wird als Induktionsperiode bezeichnet.

Unter den Begriff *Explosion* fallen alle extrem schnell verlaufenden Energiefreisetzungsvorgänge. Im Rahmen dieser Arbeit sind lediglich die Umsetzungsvorgänge gasförmiger Brennstoff von Interesse. Charakteristisch für Explosionen von Gasen ist, dass bei Erreichen der Zündbedingung in einem definierten Brennvolumen die chemisch gespeicherte Energie des Brennstoffs auf reaktionskinetischem Weg nahezu simultan in Wärme umgewandelt wird. Dabei existiert, im Gegensatz zu den oben beschriebenen Mechanismen, keine ausgeprägte Flammenfront. Durch Explosionen können jedoch harte Stoßwellen erzeugt werden (Englisch: “blast waves”), die sensitive Frischgasgemische direkt detonativ zünden können.

2.1.2 Reaktionsfrontgleichungen

Die an einer Reaktionsfront auftretenden thermodynamischen Zustandsänderungen können eindimensional mittels der Erhaltungssätze für die Masse (Kontinuität), der Energie sowie des Impulses beschrieben werden, wenn eine Hauptströmungsrichtung im Gas existiert und die Änderungen senkrecht zu dieser Richtung vernachlässigbar klein sind. Diese Herleitungen wurden im Detail von Bartlmä [Bar75] für den reibungsfreien Fall diskutiert und von Brehm [Bre87] für reibungsbehaftete Strömungen erweitert. Da diese Reaktionsfrontgleichungen die Grundlage für das Verständnis der Gasdynamik von Deflagrationen und Detonationen, sowie der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten numerischen Codes (siehe Abschnitt 2.3) bilden, werden sie hier kurz zusammengefasst.

Unter Annahme einer parallelen, reaktiven und reibungsfreien Rohr-

strömung eines idealen Gases werden die Vorgänge an der Reaktionszone in einem an der Flammenfront mitbewegten Koordinatensystem betrachtet, vgl. Abbildung 2.1. Die Reaktionszone selbst wird als Diskontinuität behandelt, d.h., sie ist im Verhältnis zu der Rohrlänge sehr dünn. Über diese Diskontinuität wird der Strömung die massenbezogene Reaktionswärme q_{12} zugeführt.

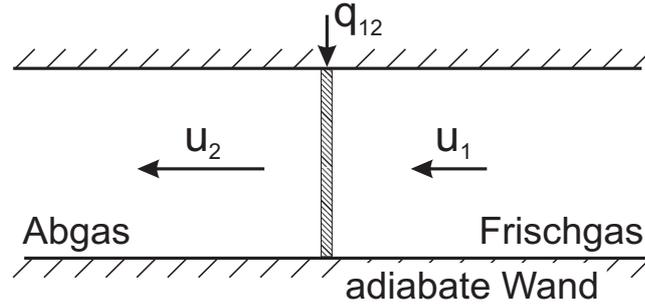


Abbildung 2.1: Eindimensionales Reaktionsfrontmodell nach Bartlmä [Bar75]. Zustände auf der Seite des Frischgases werden mit Index 1, auf der Seite der verbrannten Gase mit Index 2 bezeichnet.

Ausgehend von den oben genannten Erhaltungsgleichungen für die

$$\text{Masse} \quad \rho_1 u_1 = \rho_2 u_2, \quad (2.2)$$

$$\text{Energie} \quad \frac{u_1^2}{2} + h_1 + q_{12} = \frac{u_2^2}{2} + h_2 \quad \text{und} \quad (2.3)$$

$$\text{Impuls} \quad p_1 + \rho_1 u_1^2 = p_2 + \rho_2 u_2^2 \quad (2.4)$$

mit $q_{12} = c_p(T_2 - T_1)$ können mit der Definition der Machzahl $\text{Ma} = u/a$ sowie der dimensionslosen Darstellung der Wärmezufuhr $Q = q_{12}/(c_p T_1)$ folgende Größen vor und hinter der Reaktionsfront abgeleitet werden:

$$\frac{p_2}{p_1} = 1 + \frac{\kappa}{\kappa + 1} \gamma, \quad (2.5)$$

$$\frac{\rho_1}{\rho_2} = 1 - \frac{1}{\kappa + 1} \frac{1}{\text{Ma}_1^2} \gamma, \quad (2.6)$$

$$\frac{u_2}{a_1} = \text{Ma}_1 - \frac{1}{\kappa + 1} \frac{1}{\text{Ma}_1} \gamma \quad \text{und} \quad (2.7)$$

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{p_2 \rho_1}{\rho_2 p_1} = \left(\frac{a_2}{a_1} \right)^2 \quad (2.8)$$

mit der Substitution

$$\gamma = (\text{Ma}_1^2 - 1) \pm \sqrt{(\text{Ma}_1^2 - 1)^2 - 2(\kappa + 1) \text{Ma}_1^2 Q}, \quad (2.9)$$

wobei das positive Vorzeichen für eine Überschall- und das negative Vorzeichen für eine Unterschallanströmung gesetzt wird. Für den Fall ohne Wärmezufuhr (d.h. ohne Verbrennung, $Q = 0$) geben die Gleichungen (2.5) bis (2.8) die Zusammenhänge für einen senkrechten, adiabaten Verdichtungsstoß an.

Eliminiert man aus den Erhaltungsgleichungen die Geschwindigkeiten, so lässt sich der Drucksprung über die Reaktionsfront als Funktion des Dichteverhältnisses ρ_1/ρ_2 sowie der Wärmezufuhr darstellen, die in der Literatur als *Rankine-Hugoniot* Beziehung bekannt ist:

$$\frac{p_2}{p_1} = \frac{\frac{\kappa+1}{\kappa-1} - \frac{\rho_1}{\rho_2} + \frac{2\kappa}{\kappa-1} Q}{\frac{\kappa+1}{\kappa-1} \frac{\rho_1}{\rho_2} - 1}. \quad (2.10)$$

Die Kombination der Kontinuitätsgleichung (2.3) sowie der Impulsgleichung (2.4) ergibt die sogenannte *Rayleigh-Gerade*:

$$\frac{p_2}{p_1} = 1 + \kappa \text{Ma}_1^2 \left(1 - \frac{\rho_1}{\rho_2} \right). \quad (2.11)$$

Alle Rayleigh-Geraden verlaufen in der $\rho_1/\rho - p/p_1$ Ebene (siehe Abbildung 2.2) durch den Punkt (1,1), die Steigung der Rayleigh-Geraden ($-\kappa \text{Ma}_1^2$) ist ein Maß für die Anströmgeschwindigkeit der Reaktionsfront. Dieser Punkt wird auch Ursprung der Rankine-Hugoniot Kurven genannt. Da stets Gleichung (2.10) und zugleich (2.11) erfüllt sein müssen, sowie die zugeführte Wärme Q in einer exothermen Reaktion nicht negativ sein kann, ist in den grau hinterlegten Bereichen in Abbildung 2.2 keine physikalische Lösung dieses Zweigleichungssystems möglich. Schnittpunkte der Rayleigh-Geraden mit den Rankine-Hugoniot Kurven in den weiß hinterlegten Gebieten können theoretisch realisiert werden.

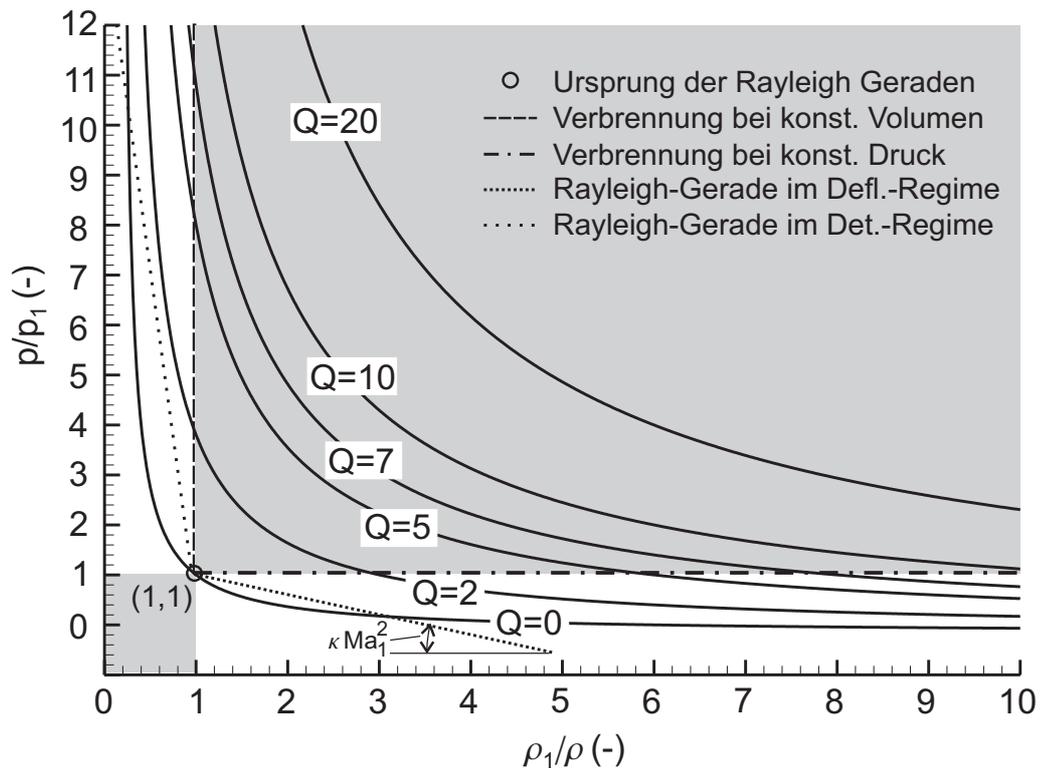


Abbildung 2.2: Rankine-Hugoniot Diagramm für Gemische mit $\kappa = 1.4$.

Der weiß hinterlegte Bereich mit $\rho_1/\rho > 1$ wird als Unterschall Deflagrations-Regime, der Bereich $p/p_1 > 1$ als Überschall Detonations-Regime bezeichnet. Im Bereich der Deflagrationen ist eine quantitative Vorausberechnung der Zustände im Rankine-Hugoniot Diagramm schwierig, da im instationären Fall die Anströmgeschwindigkeit Ma_1 (entsprechend der Differenz aus Flammenausbreitungsgeschwindigkeit und Expansionsströmung) von vielen Faktoren abhängt, vgl. Abschnitt 2.2. Für die Interpretation der Zustände im Deflagrationsast des Rankine-Hugoniot Diagramms sei auf die grundlegende Verbrennungsliteratur verwiesen (u.a. [Wil85, Bar75, Kuo86]). Im Detonationsbereich sind eindeutige Lösungen möglich, welche in Abschnitt 2.3 erläutert werden.

2.2 Deflagrative Mechanismen der Flammenausbreitung

2.2.1 Laminare und turbulente Flammen

Abhängig vom lokalen Zustand des Strömungsfeldes, in das sich eine Reaktionszone hineinbewegt, lassen sich Deflagrationen in laminare und turbulente Flammen klassifizieren. Die laminare Flammenausbreitung ist in der vorgemischten Verbrennung nur von untergeordneter Bedeutung, da in technisch relevanten Geometrien meist schon geringe Strömungsgeschwindigkeiten genügen, um das Strömungsfeld vor der Flamme in ein turbulentes umschlagen zu lassen. Laminare Flammen liegen, wenn überhaupt, nur unmittelbar nach der Zündung eines brennbaren Gemisches für kurze Zeit vor. Die laminare Brenngeschwindigkeit ist jedoch eine essentielle Bezugsgröße zur Beschreibung turbulenter Flammen.

Die Ausbreitung einer *laminare Flammenfront* ist hauptsächlich von der Brennstoffkonzentration und somit von der chemischen Reaktionsrate bestimmt. Durch kontinuierliche Wärme- und Stoffübertragungsvorgänge wird gewährleistet, dass das sich unmittelbar vor der Reaktionszone befindende Brenngasgemisch die Selbstzündbedingung infinitesimal früher erreicht, als das nächste. Die Flamme bewegt sich mit einer konstanten Geschwindigkeit durch den Brennraum und weist, im Gegensatz zu der meist stark zerklüfteten turbulenten Flamme, eine glatte Oberfläche auf.

Die Dicke der laminaren Flammenfront δ_l setzt sich aus einer Vorwärmzone δ_{ph} sowie der eigentlichen Reaktionszone δ_r zusammen und ergibt sich aus dem Produkt der Reaktionszeit τ_c und der laminaren Brenngeschwindigkeit s_l :

$$\delta_l = s_l \tau_c, \quad (2.12)$$

wobei nach Peters [Pet91, Pet97] näherungsweise

$$\delta_r \approx 0.1 \delta_l \quad (2.13)$$

angenommen werden kann. Die laminare Flammendicke δ_l läßt sich für den technischen Gebrauch mit ausreichender Genauigkeit nach Williams

[Wil85] wie folgt approximieren:

$$\delta_l \approx \frac{\lambda}{\rho c_p s_l} . \quad (2.14)$$

Die laminare Brenngeschwindigkeit ist als experimentell bestimmte Größe mit einer gewissen Unsicherheit behaftet, da in der Literatur eine Vielzahl von experimentellen Methoden zu ihrer Bestimmung verwendet wurden, die Andrews und Bradley [AB72] kritisch analysierten. Messungen von Koroll [KKB93], wie sie in Abbildung 2.3 dargestellt sind, geben gute Referenzwerte für H₂-Luft Flammen an.

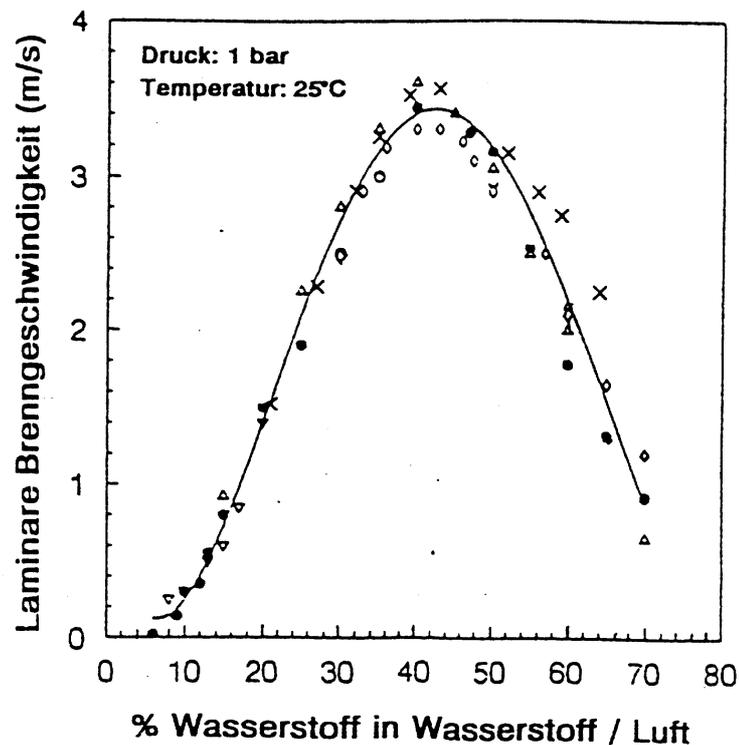


Abbildung 2.3: Experimentell ermittelte Brenngeschwindigkeiten von Wasserstoff-Luft Flamme bei Umgebungsdruck und -temperatur [KKB93].

Durch die Zunahme der Temperaturleitfähigkeit und die exponentielle Abnahme der Reaktionszeit mit steigender Temperatur unterliegt die laminare Brenngeschwindigkeit einer starken Temperaturabhängigkeit, die Liu und

McFarlane [LM83] wie folgt formulierten:

$$s_l(T) = s_l(T_0) \left(\frac{T}{T_0} \right)^n, \quad (2.15)$$

mit $n = A + B(0.42 - \gamma_{\text{H}_2})$, $A = 1.571$, $B = 0.3839$ für $\gamma_{\text{H}_2} \leq 0.42$ bzw. $B = -0.2476$ für $\gamma_{\text{H}_2} > 0.42$.

Neben der Temperaturabhängigkeit lässt sich auch eine Druckabhängigkeit der laminaren Brenngeschwindigkeit feststellen. Hier gilt nach Lewis [Lew54] der Zusammenhang

$$s_l(p) = s_l(p_0) \left(\frac{p}{p_0} \right)^{(n-2)/2}, \quad (2.16)$$

wobei n kleiner als 2 für $s_l < 50$ cm/s, gleich 2 für $50 < s_l < 100$ cm/s und größer 2 für $s_l > 100$ cm/s ist.

Bei der *turbulenten Verbrennung* hängt die Flammenausbreitung neben den reaktionskinetischen Vorgängen insbesondere von dem, durch die Turbulenz in der Strömung erhöhtem Wärme- und Stofftransport zwischen verbrannten und unverbrannten Gemisch ab. Eine turbulente Strömung besteht aus einer Vielzahl von Wirbeln, die sich fortlaufend verändern und überlagern. Diese Wirbel besitzen eine begrenzte Lebensdauer, wobei im Mittel mehr Energie zu kleineren als zu größeren Wirbeln übertragen wird [Bra99, Fer99]. Über eine Kaskade durchschnittlich immer kleiner werdender Wirbeldurchmesser wird die von der Strömung produzierte Turbulenzenergie zu Wärme dissipiert. Die Wechselwirkung einer Reaktionszone mit Wirbeln unterschiedlichster Größe hat einen entscheidenden Einfluss auf die Brenngeschwindigkeit. Eine ausführliche Zusammenfassung über die in einem Strömungsfeld definierten Wirbel- bzw. statistischen Turbulenzgrößen sowie ihrer experimentellen Bestimmung findet sich u.a. bei Eder et al. [EDJ01, EEM98] und sei deshalb hier nur kurz zusammengefasst.

Die momentane Strömungsgeschwindigkeit einer turbulenten Strömung kann als Überlagerung ihres zeitlichen Mittelwertes mit einem momentanen Schwankungswert angesehen werden:

$$U(x, y, z, t) = \bar{u}(x, y, z, t) + u'(x, y, z, t), \quad (2.17)$$

wobei die mittlere Abweichung von dem Mittelwert als “root-mean-square” (rms) Turbulenzintensität angegeben wird:

$$u'_{rms} = \sqrt{u'^2} . \quad (2.18)$$

Ein Maß für die Stärke der Wirbel in einer Strömung [Kuo86] stellt der Turbulenzgrad dar, der als Verhältnis der Schwankungsbewegung zu der mittleren Strömungsgeschwindigkeit in Hauptströmrichtung definiert ist:

$$\text{Tu} = \frac{u'_{rms}}{\bar{u}} . \quad (2.19)$$

Unter den in einem Größenspektrum vorkommenden Wirbelgrößen einer turbulenten Strömung lassen sich drei ausgezeichnete Wirbelgrößen definieren. Das *Makromaß* L_L charakterisiert die größten in einer Strömung vorkommenden Wirbelmaße, die Größenordnung liegt im Bereich der die Strömung begrenzenden Geometrie. Sie stellen jedoch nur einen Bruchteil der gesamten turbulenten Energie dar, ebenso ist ihr Vorkommen statistisch gesehen vernachlässigbar. Der größte Anteil der turbulenten Energie wird den Wirbeln im Größenbereich des *integralen Längenmaßes* L zugeschrieben. Als “durchschnittliche Wirbelgröße” [Tay35] bilden sie den größten Anteil an der mittleren Schwankungsbewegung u'_{rms} , ihr Zeitmaß ist deshalb als

$$\tau_L = \frac{L}{u'_{rms}} \quad (2.20)$$

definiert. Basierend auf dem integralen Längenmaß lässt sich eine turbulente Reynoldszahl definieren:

$$\text{Re}_L = \frac{u'_{rms} L}{\nu} . \quad (2.21)$$

Der kleinste in einer turbulenten Strömung vorkommende Wirbelbereich wird über das *Kolmogorowsche Wirbelmaß* l_s definiert. Kolmogorov [Kol41a, Kol41b, Kol41c] hat gezeigt, dass die kleinsten Wirbelmaße nur von der Dissipationsrate ε sowie der kinematischen Viskosität ν abhängen.

Für den Wirbeldurchmesser und das zugehörige Geschwindigkeitsmaß gelten:

$$l_s = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon} \right)^{\frac{1}{4}} \quad \text{und} \quad u_s = (\varepsilon \nu)^{\frac{1}{4}}. \quad (2.22)$$

Damit ergibt sich das Kolmogorovsche Zeitmaß τ_s zu:

$$\tau_s = \frac{l_s}{u_s} = \sqrt{\frac{\nu}{\varepsilon}}. \quad (2.23)$$

Der Einfluss verschieden großer turbulenter Strömungswirbel auf die Flammenfront ermöglicht eine Klassifizierung turbulenter Flammen in turbulente Brennbereiche. Grundlage dieser Einteilung ist das Verhältnis der Reaktionszonendicke und der Größe der makroskopischen Wirbel im Bereich des integralen Längenmaßes sowie der Kolmogorovschen Mikrowirbel. Die Vorstellung der einzelnen Brennbereiche hat sich dabei im Laufe der stetig verbesserten laseroptischen Meßmethoden zur Visualisierung der Reaktionszone anhand nur in der Reaktionszone vorkommender Spezies (vgl. u.a. von Jordan [Jor99] durchgeführte Visualisierung der Reaktionszone am C_xH_y -Radikal) grundlegend gewandelt. So wurde die von Borghi [Bor84] und in der Folge von Peters [Pet86, Pet92] in einem ersten Phasendiagramm beschriebene Aufdickung der Reaktionszone durch Wirbel, die in die Reaktionszone eindringen, in einem von Peters [Pet97] überarbeiteten Phasendiagramm nicht mehr aufgegriffen, wie in der Folge anhand Abbildung 2.4 dargelegt wird.

Der Bereich der turbulenten Flammen ($Re_L \geq 1$) lässt sich in den Bereich der Flamelets, der dünnen Reaktionszonen sowie der unterbrochenen Reaktionszonen unterteilen. Kriterium für die Bereichsteilung des Flamelets sowie der dünnen Reaktionszone stellt die Karlovitzzahl Ka dar, die als Verhältnis von chemischer Reaktionszeit τ_c und dem Zeitmaß der Kolmogorovschen Mikrowirbel τ_s definiert ist:

$$Ka = \frac{\tau_c}{\tau_s} = \frac{\delta_l^2}{l_s^2}. \quad (2.24)$$

Damit lässt sich der Flameletbereich als das Regime interpretieren, in dem keine nennenswerte Interaktion zwischen den kleinstmöglichen Wirbeln ei-

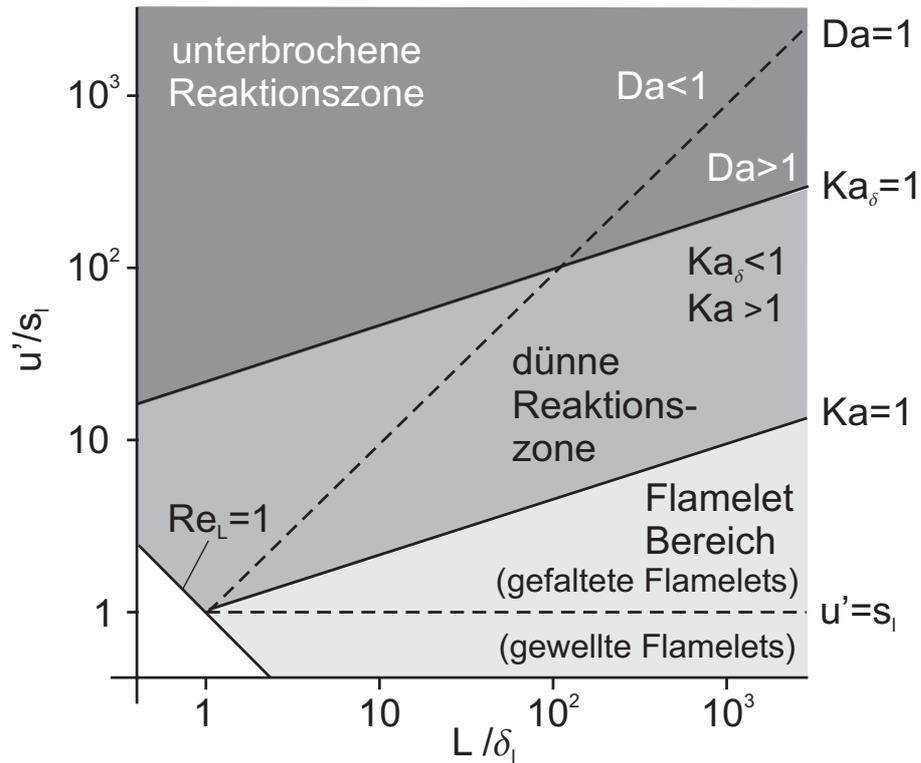


Abbildung 2.4: Phasendiagramm für die deflagrative turbulente Verbrennung nach Peters [Pet97].

ner Strömung und der Flammenfront stattfindet, da diese Wirbel nicht in die Flamme der Dicke δ_l eindringen können. Mit diesem Regime wird auch der Begriff der schnellen Chemie assoziiert. Im darüberliegenden Bereich $Ka > 1$, der in dem von Borghi vorgeschlagenen Phasendiagramm noch als Regime der “dicken turbulenten Flammen” bezeichnet wird, können Wirbel in die Reaktionszone eindringen. Sie sind jedoch nach wie vor zu groß, um in die eigentliche Reaktionszone der Dicke δ_r einzudringen, vgl. Gleichung (2.13). Diesen Einfluss drückt Peters mit der auf die laminare Reaktionszone bezogenen Karlovitzzahl Ka_δ aus:

$$Ka_\delta = \frac{\delta_r^2}{l_s^2} = 0.01Ka . \quad (2.25)$$

Die Dicke der lokalen Reaktionszone selbst ist in diesem Regime gleich der im Bereich der Flamelets. Die Interaktion der Wirbel mit der Vorwärmzone der Flamme führt jedoch zu einem erhöhten Wärme- und Stoffaustausch vor der Flamme. Der zunehmende Einfluss der im Vergleich zum Flamelet-

Regime stärkeren Turbulenz (ausgedrückt durch u'_{rms}) führt dazu, dass die Flammenfaltung stärker und feinskaliger wird. Dies wurde in der Literatur z.T. als Aufdickung interpretiert, die effektive Dicke der Reaktionszone ändert sich hingegen aber nicht. Oberhalb dieses Bereiches im Phasendiagramm ($Ka_\delta > 1$) treten lokale Flammenlöscheffekte auf, da Radikale vom Ort der Reaktion wegbefördert werden, bevor diese beendet ist. Dieser Bereich wird mit dem Begriff der “langsamen Chemie” assoziiert.

Der Einfluss von Wirbeln im Größenbereich des integralen Längenmaßes wird durch die Damköhlerzahl Da als Verhältnis des integralen Wirbelzeitmaßes zu dem chemischen Zeitmaß interpretiert:

$$Da = \frac{\tau_L}{\tau_c} = \frac{s_l L}{u'_{rms} \delta_l} . \quad (2.26)$$

Obwohl die charakteristische Abgrenzung mit der Linie $Da = 1$ in [Pet97] nicht explizit diskutiert wird, erscheint ihre Definition in der hohturbulenten Verbrennung durchaus berechtigt. Das von Borghi als “homogener Reaktor” interpretierte Regime $Da > 1$ kann gedeutet werden als Bereich, in dem keine explizite Flammenfront mehr vorliegt sondern einzelne Gemischbereiche simultan reagieren. Wie in charakteristischen Schnittbildern von turbulenten Flammen in Abbildung 2.5 erkennbar, ist diese Definition durchaus berechtigt.

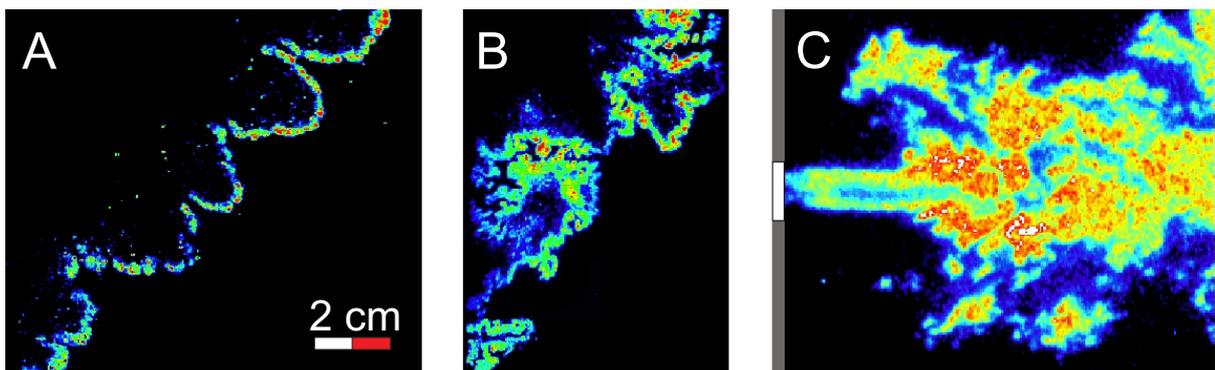


Abbildung 2.5: Flammenschnittbilder von Wasserstoff-Luft-Flammen im Bereich der Flamelets (A) und der dünnen Reaktionszonen (B) [Ard98] sowie einer Jet-Zündung im Bereich der unterbrochenen Reaktionszonen mit $Da < 1$ (C) [Jor99], visualisiert mit der planare Laser-induzierter Prädissoziations-Fluoreszenz am OH-Radikal.

Die Interaktion von Strömungswirbeln mit der Flammenfront führt, wie oben eingehend dargestellt, zu einer mitunter erheblichen Vergrößerung der Flammenoberfläche. Durch diesen, sowie den ebenfalls beschriebenen Effekt des erhöhten Wärme- und Stofftransportes vor der Flammenfront wird pro Zeiteinheit mehr Energie umgesetzt verglichen mit einer glatten Flammenoberfläche im rein laminaren Fall. Die Flammenfront breitet sich mit einer *turbulenten Brenngeschwindigkeit* s_t aus, die ein Vielfaches der laminaren Brenngeschwindigkeit beträgt. In der Literatur wurden zahlreiche Versuche unternommen, die turbulente Brenngeschwindigkeit als Funktion von Turbulenzgrößen der Strömung sowie der laminaren Brenngeschwindigkeit auszudrücken. Diese empirischen Ansätze sind u.a. in den Arbeiten von Andrews et al. [ABL75], Bradley [Bra92], Beauvais [Bea94], Kuo [Kuo86] und insbesondere Abdel-Gayed und Bradley [AGB81] diskutiert. Die Problematik bei der analytischen Beschreibung von s_t liegt vorwiegend in der Interpretation der Turbulenz. Neben der Turbulenz im unverbrannten Gemisch vor der Flamme führten Tsuruda et al. [TH91] sechs weitere Phänomene auf, die Einfluss auf die Turbulenz vor der Flamme nehmen können.

Da die Einflüsse der Turbulenz nicht immer messtechnisch erfasst werden konnten, ergibt sich eine große Streuung bei dem Vergleich aller bisher gefundenen relevanten Beziehungen (siehe u.a. [BCD⁺00, Mos97]) um bis zu 70%. Eine weitere Inkonsistenz stellt die Berücksichtigung der lokalen Flammenlöschung im hochturbulenten Bereich dar, die sich mindernd auf die turbulente Brenngeschwindigkeit auswirkt. Aus diesen Gründen erscheinen Korrelationen, die anhand von Strömungsmessungen mit dem berührungslosen Verfahren der Laser-Doppler Anemometrie¹ gewonnen wurden, am geeignetsten, um die turbulente Brenngeschwindigkeit zu ermitteln. Ein auf diese Weise unter Berücksichtigung der lokalen Flammenlöschung ermitteltes turbulentes Brenngesetz wurde von Beauvais [Bea94] aufgestellt. Die Gültigkeit dieses Brenngesetzes wurde anhand von Messungen in verschiedenen Geometrien ([Jor99, Dur00]) gezeigt und konnte auch in einem numerischen Code [Ard98] erfolgreich eingesetzt werden.

¹Für eine detaillierte Beschreibung dieses Messverfahrens siehe u.a. [DMW87, Ruc87, EDJ01].

Beauvais formulierte sein Brenngesetz wie folgt:

$$\frac{s_t}{s_l} = 1 + b \left[\sqrt{\frac{\bar{L}}{\delta_l}} \left(\sqrt{\frac{u'_{rms}}{s_l} + 1} - 1 \right) - c \left(\frac{u'_{rms}}{s_l} \right)^2 \right]. \quad (2.27)$$

Der Parameter b wurde in den Versuchen von Beauvais konzentrationsabhängig bestimmt, die Folgearbeiten [Ard98, Jor99, Dur00] konnten Messungen mit einem konstanter Faktor $b = 0.53$ in guter Näherung beschreiben. Die Variable c des Löschterms kann mit Hilfe von

$$c = \frac{0.157 \text{ Le}}{4(\text{K Le})_{Lö}} \quad (2.28)$$

bestimmt werden. Wie in Gleichung (2.28) erkennbar ist, verwendet Beauvais neben einem Flammenstreckungsfaktor K zur Modellierung der Flammenlöschung die Lewiszahl Le , die die diffusiven Stoffeigenschaften des unverbrannten Gemisches berücksichtigt und als Quotient der Temperaturleitfähigkeit a sowie des Diffusionskoeffizienten D der in der Reaktionszone knappsten Frischgaskomponente definiert ist:

$$\text{Le} = \frac{a}{D} = \frac{\lambda}{\rho c_p D}. \quad (2.29)$$

Gilt $\text{Le} > 1$, so kommt es bei einer konvexen Ausbuchtung der Flammenoberfläche relativ zu dem unverbrannten Gemisch zu einer örtlichen Verlangsamung der Reaktionsfront, da die Wärmeverluste in die gegenüber dem ebenen Fall vergrößerte Vorwärmzone größer sind, als der Effekt der zusätzlichen Diffusion in die Flammenzone hinein. Bei $\text{Le} < 1$ kommt es hingegen zu einer Steigerung der Reaktionsrate: Die Abkühlung durch Wärmeverluste ist kleiner als die Aufheizung durch die zusätzlich eindiffundierten Reaktionspartner. Für konkave Einbuchtungen kehren sich diese Verhältnisse um.

Der Flammenstreckungsfaktor K kann wie die Karlovitzzahl Ka , definiert mit dem Taylorschen Mikrowirbeldurchmesser, der in der heutigen Turbulenztheorie keine Bedeutung mehr hat [TL87], interpretiert werden. Mit Beziehungen von Friedrich [Fri86] sowie Abdel-Gayed und Bradley

[AGB89] kann gezeigt werden, dass folgender direkter Zusammenhang zwischen K und Ka besteht:

$$Ka = K\sqrt{15} . \quad (2.30)$$

Abdel-Gayed und Bradley [AGB89] verwendeten den Term $K \cdot Le$ ebenfalls, um die lokale Löschung einer Flamme durch Turbulenz zu beschreiben. Gilt $Re_L < 300$, so erfolgt die Flammenlöschung ab $K \cdot Re_L^{-0.5} > 0.0079$; für $Re_L > 300$ hingegen lautet das Kriterium $K \cdot Le \geq 1.5$.

2.2.2 Mechanismen der Flammenbeschleunigung

Die Beschleunigung einer deflagrativen Flammenfront stellt im Rahmen dieser Arbeit eine wesentliche Voraussetzung für den Übergang von der Deflagration in die Detonation dar. Nach einer punktuellen Zündung breitet sich die Flamme wie bereits oben erwähnt nur für sehr kurze Zeit laminar aus. Die Turbulenz der induzierten Strömung aber auch diffusive und hydrodynamische Instabilitäten führen schnell zu einer Ausbildung von Flamelets an der Flammenfront. Letztere waren deshalb oft Gegenstand detaillierter experimenteller und analytischer Untersuchungen. Eine grundlegende hydrodynamische Instabilität wurde von Darrieus und Landau [Lan44] beobachtet, die eine Änderung der Brenngeschwindigkeit an gekrümmten Flammenoberflächen durch eine Strömungsumlenkung an der Flammenfront beschreibt [Wil85].

Die Ausbildung von zellularen Flammenfronten wird auch insbesondere durch die Rayleigh-Taylor Instabilität verstärkt [Tay49, SW87, SW86]. Dieser Effekt beschreibt die Ausbildung von Ausbuchtungen an der Flammenoberfläche durch eine Überlagerung von Druckwellen normal zur Flammenoberfläche mit dem tangential zur Flammenoberfläche vorhandenen Dichtegradienten. Wenn bereits eine stark gekrümmte und zellulare Flammenfront vorliegt, führt die Rayleigh-Taylor Instabilität dazu, dass an konkav gekrümmten Ausbuchtungen verstärkt unverbranntes Gas in das Abgas "hineingeschoben" wird. Ein weiterer aus der Rayleigh-Taylor Instabilität zu beobachtender Effekt ist die Ausbildung von Wirbeln an der Flammenoberfläche, wenn sie von einer Druckwelle passiert wird. Dieser barokline Effekt der Wirbelbildung wird mathematisch durch die Rotation $\nabla p \times \nabla \rho$

beschrieben. Eine ausführliche Darstellung der durch die Rayleigh-Taylor Instabilitäten induzierten Effekte findet sich in der Arbeit von McIntosh [McI95].

Die Ausbildung von Druckwellen an der Flammenfront stellt eine wesentliche Voraussetzung für die Beschleunigung von Flammen dar. Ihrer Entstehung können verschiedenste Ursachen zugrunde liegen, die von Chu [Chu53] mathematisch diskutiert wurden. Basierend auf einer Arbeit von Peters und Williams [PW89] stellten Shepherd und Lee [SL92] einen Rückkopplungsmechanismus zwischen den baroklinen Effekten der Rayleigh-Taylor Instabilität und der Druckwellenerzeugung dar. Demnach werden durch die Wirbelbildung an der Flammenfront Frischgasanteile in das Abgas befördert, die dann als “volumetrisch explodierende Wirbel” zünden. Die dadurch ausgelöste Druckwelle überholt die Flammenfront und es kommt zu einer erneuten Wirbelbildung.

Druckwellen werden stets an der Flammenfront generiert, wenn sich die Wärmezufuhr Q der Flamme und somit die Brenngeschwindigkeit ändert. Bartlmä [Bar75] untersuchte die Druckwellenerzeugung allgemein an Deflagrationen, die Grundlage für die von Brehm [Bre87] beschriebenen Stabilitätskriterien für den Übergang von der Deflagration in die Detonation waren, siehe Abschnitt 2.4. Der Einfluss der auf diese Art generierten Druckwellen auf die Flammenausbreitung lässt sich anhand der in Abbildung 2.6 gezeigten, typischen Weg-Zeit Diagrammen erklären.

Eine Flammenfront F , die sich im Punkt A_1 befindet, beschleunigt zum Zeitpunkt t_1 sprunghaft und sendet dabei zwei Druckwellen s_1 und s_1' aus (die Druckwelle s_1' bewegt sich in das verbrannte Gas hinein). Durch die Welle s_1 wird das Frischgasgemisch vor der Flamme (Bereich 5) komprimiert und erhitzt, wodurch sich die laminare Brenngeschwindigkeit s_l mit den in Gleichung (2.15) und (2.16) dargestellten Beziehungen erhöht. Eine Kontaktfläche C trennt dabei den Bereich zwischen der sich in das Abgas bewegenden Druckwelle sowie der Flammenfront in die Abschnitte 3 und 4. Sie ist gekennzeichnet durch die Bedingung $p_3 = p_4$ und $\overline{u_3} = \overline{u_4}$.

Tritt zum Zeitpunkt t_2 erneut eine Beschleunigung aufgrund der Auswirkungen der vorangegangenen Beschleunigung im Punkt A_1 auf, so bewegt sich die dabei erzeugte Druckwelle s_2 aufgrund der nun höheren Schallge-

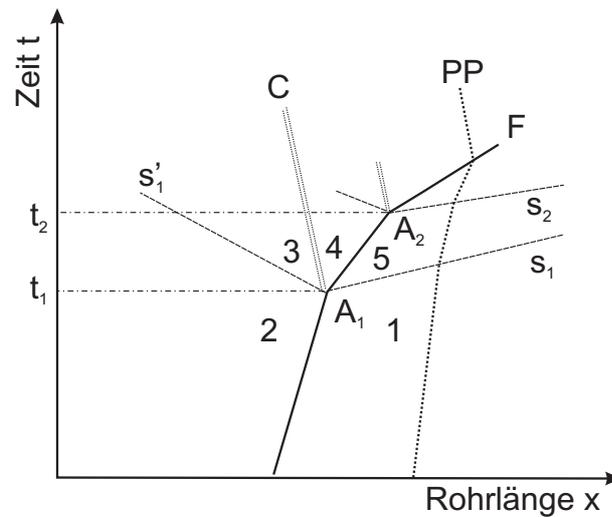


Abbildung 2.6: Weg-Zeit Diagramme einer Flammenbeschleunigung durch Generierung von Druckwellen.

schwindigkeit vor der Flamme schneller als die Druckwelle s_1 , so dass diese aufeinander laufen. Somit bildet sich vor der Flamme kontinuierlich eine immer stärker und schneller werdende Stoßwelle aus.

Der flammenbeschleunigende Effekt der Druckwellen wird verstärkt durch die Reflektion der erzeugten Druckwellen an Wänden, wodurch es möglich ist, dass eine Druckwelle mehrmals mit der Flammenfront interagiert. Die Bedeutung dieses Einflusses verdeutlichten Shepherd und Lee [SL92] in einem von ihnen durchgeführten Experiment, bei dem die Wand mit einem Druckwellen absorbierenden Material verkleidet war. Bei sonst identischen Randbedingungen konnte so die maximal erreichbare Flammenausbreitungsgeschwindigkeit von 1000 m/s durch Druckwellenabsorption an der Rohrwand auf 100 m/s gesenkt werden.

Wird eine Stoßwelle vor der Flamme reflektiert, so dass sie frontal auf die Flammenfront auftrifft, kommt es zu einer weiteren Interaktion zwischen Flamme und Stoß. Dieses Phänomen wird als Richtmyer-Meshkov Instabilität [Ric60, Mes70] bezeichnet und beschreibt allgemein die Interaktion zwischen einem Stoß und einer Dichtediskontinuität. Diese Instabilität ist phänomenologisch mit der Rayleigh-Taylor Instabilität zu vergleichen und wurde erstmals von Markstein [Mar64] beschrieben. Der Unterschied liegt darin, dass bei der Rayleigh-Taylor Instabilität die Beschleunigung der Diskontinuität relativ langsam durch die schwachen Druckwellen er-

folgt, wobei die Beschleunigung bei der Richtmyer-Meshkov Instabilität durch starke Stoßwellen erfolgt. Die starke Verformung der Flamme in Folge der Richtmyer-Meshkov Instabilität führt zu einer Kelvin-Helmholtz Instabilität [BCD⁺00], welche die effektive Flammenoberfläche noch weiter vergrößert und die Energieumsetzungsrate erheblich erhöht. Die Kelvin-Helmholtz Instabilität beschreibt die starke turbulente Durchmischung zweier Fluide (deren Dichte im Gegensatz zu der Rayleigh-Taylor Instabilität nicht verschieden sein muss) infolge der sich ausbildenden Scherkräfte, falls sie sich relativ zueinander bewegen. Ein anschauliches Beispiel für die Kelvin-Helmholtz Instabilität ist die Wellenbildung von glattem Wasser, wenn sich die Luft darüber bewegt.

Richtmyer-Meshkov Instabilitäten wurden idealisiert von Thomas et al. [TSBJ97] experimentell und von Khokhlov und Oran [KO99] und Khokhlov et al. [KOT99, KOCW99] numerisch untersucht, wobei eine Stoßwelle – erzeugt mit einer Treibersektion eines Stoßwellenrohres – mit einer “Flammenblase”, d.h. einer in der Rohrmitte gezündeten, laminar brennenden Flamme interagiert. Dabei konnte gezeigt werden, dass durch diese Art der Stoß-Flamme-Wechselwirkung ein Übergang in die Detonation erfolgen kann. Dieses Phänomen wurde im Rahmen dieser Arbeit unter realen Verhältnisse in einem Explosionsrohr sowie für Wasserstoff-Luft Gemische untersucht und wird in Kapitel 5.1.4 weiter ausgeführt.

Neben den gasdynamischen Effekten tragen auch rein fluiddynamische Effekte stark zur Flammenbeschleunigung bei. Erhöht sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Flammenfront, so nimmt auch die Geschwindigkeit der Expansionsströmung vor der Flamme zu. Dies induziert eine Zunahme der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit u'_{rms} , die – sofern die Löschgrenze (KLe) nicht überschritten wird – sich wiederum beschleunigend auf die Brenngeschwindigkeit (vgl. Gleichung (2.27)) auswirkt. Nimmt die Turbulenzintensität einer Strömung zu, so verschiebt sich auch das turbulente Wirbelspektrum zu kleineren Skalen, d.h. die Größe der kleinsten Wirbeldurchmesser einer Strömung nimmt ab. Dadurch kann sich das turbulente Brennregime ändern, so dass Mikrowirbel in die Vorwärmzone oder in die Reaktionszone, wie oben dargestellt, eindringen können.

Besonderen Einfluss hat die Erzeugung von Turbulenz in der Strömung

durch Hindernisse, auch Turbulenzpromotion genannt. Ardey [Ard98] und Durst [Dur00] untersuchten die lokal auftretenden Effekte bei der Wechselwirkung von Einzelhindernissen mit der flammeninduzierten Strömung sowie der Flamme selbst. Dabei konnte festgestellt werden, dass eine kubische Abhängigkeit zwischen der mittleren Schwankungsgeschwindigkeit und der Flammenausbreitung besteht ($u_F \sim u'_{rms}{}^3$). Um eine effektive und nachhaltige Flammenbeschleunigung für den Übergang von der Deflagration in die Detonation zu gewährleisten, wurden in der hier vorliegenden Arbeit periodisch angeordnete Hindernisse in Form von Blenden verwendet, siehe Abbildung 3.2 (Seite 60).

Besondere Bedeutung ist bei der Hindernis-induzierten Flammenbeschleunigung dem Grad der Querschnittsverengung des Rohres, die ein Hindernis für die Strömung bzw. die Flamme darstellt und durch die Blockierrate BR ausgedrückt wird, beizumessen:

$$\text{BR} = \frac{A_{\text{Hindernis}}}{A_{\text{Kanal}}} . \quad (2.31)$$

Wie Beauvais et al. [BMS94] ausführlich darstellten, führen abhängig von der Querschnittsverengung verschiedenartige physikalische Effekte zu einer Hindernis-induzierten Flammenbeschleunigung. Hindernisse mit einer kleinen Blockierrate (bis $\text{BR} \approx 30\%$) haben einen, einer sehr rauen Wand vergleichbaren Effekt, d.h., diese Hindernisse führen bei einer nur geringen Erhöhung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit zu einem höheren Turbulenzeintrag in die Strömung verglichen zu einem unblockierten Rohr. Bei höheren Blockierraten ($\text{BR} > 50\%$) nimmt aufgrund der stärkeren Querschnittsverengung die Geschwindigkeit der Expansionsströmung in der Blendenöffnung zu, wodurch sich – zusätzlich zu dem Einfluss der Turbulenz – auch die lokale Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flamme entsprechend erhöht. Die Flammenbeschleunigung innerhalb einer Hindernisstrecke mit einer Blockierrate von $\text{BR} = 60\%$ bis zur Entstehung von Stoßwellen vor der Flammenfront ist in Abbildung 2.7 dargestellt.

Ab einer Blockierrate von ca. 90% stellt sich durch die starke Querschnittsverengung eine Freistahlströmung ein. Durch die hochturbulenten Scherschichten im Freistahl kann die Flamme bei dem Passieren eines Hindernisses kurzzeitig erlöschen. Dadurch werden hochreaktive Zwischenprodukte

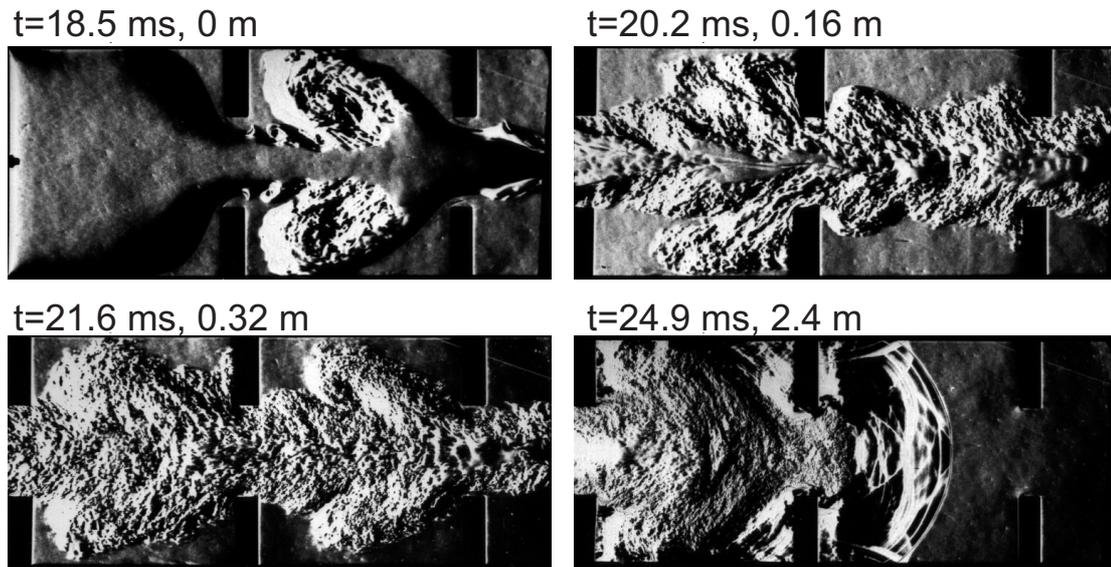


Abbildung 2.7: Beschleunigung einer 70 vol % H_2 -Luft Flamme in einer Hindernisstrecke mit einer Blockierrate von $BR = 60\%$. Die Kanalhöhe beträgt 80 mm [KMAD99].

(Radikale) in das Volumen hinter dem Hindernis befördert, wodurch es zu einer volumetrischen Reaktion kommt. Dieser Effekt wurde an einem Einzelhindernis von Jordan [Jor99] beschrieben. In Abbildung 2.5/C (Seite 17) ist exemplarisch eine derartige Volumenreaktion als Flammenschnittbild dargestellt.

Im Falle von periodischen Hindernissen mit hoher Blockierrate bilden sich zwischen den einzelnen Kammern immer größere Druckunterschiede aus. Die Flammenausbreitung erfolgt durch volumetrische Zündung des Gemischbereichs zwischen zwei Hindernissen, der dabei entstandene Druck schiebt das heiße Abgas über einen turbulenten Freistrahle in die nächste "Kammer", in der es dann erneut durch eine hochturbulente Durchmischung von Abgas und Frischgas zu einer nahezu volumetrischen Verbrennung kommt. Diese Art der Flammenausbreitung kann zu einem vollständigen Erlöschen der Flamme führen, wenn in einer "Kammer" aufgrund zu großer Turbulenz keine Zündung erfolgt. Dieses Ausbreitungsverhalten wird in der englischen Literatur als Quenching Regime [BCD⁺00] bezeichnet.

Neben der Blockierrate hat der Abstand der Hindernisse l_{SP} zueinander

einen großen Einfluss auf die Flammenbeschleunigung. Ist der Abstand zwischen zwei Hindernissen so klein, dass sich die freien Scherschichten nicht mehr an die Rohrwand anlegen können, so kommt die flammenbeschleunigende Wirkung der Hindernisse nicht mehr voll zur Geltung. Abbildung 2.8 zeigt den Einfluss des Hindernisabstands bei der Flammenbeschleunigung. Dieses Diagramm wurde basierend auf experimentellen Untersuchungen in dem Explosionsrohr, das auch in dieser Arbeit verwendet wurde, ermittelt [Bea94]. Diese Ergebnisse dienen hier als Grundlage für die Beschleunigung der Flamme bis zum Übergang zur Detonation, siehe Kapitel 3.

Die Abhängigkeit der maximalen Flammengeschwindigkeit in Abbildung 2.8 zeigt ein konträres Verhalten von Hindernissen mit kleiner und großer Blockierrate. Bei Hindernissen mit einer Blockierrate von $BR = 30\%$ nimmt die beschleunigende Wirkung mit zunehmendem Hindernisabstand kontinuierlich ab. Aufgrund der oben beschriebenen Effekte, die bei einer Blockierung von 70% der Querschnittsfläche auftreten, gibt es hier für die

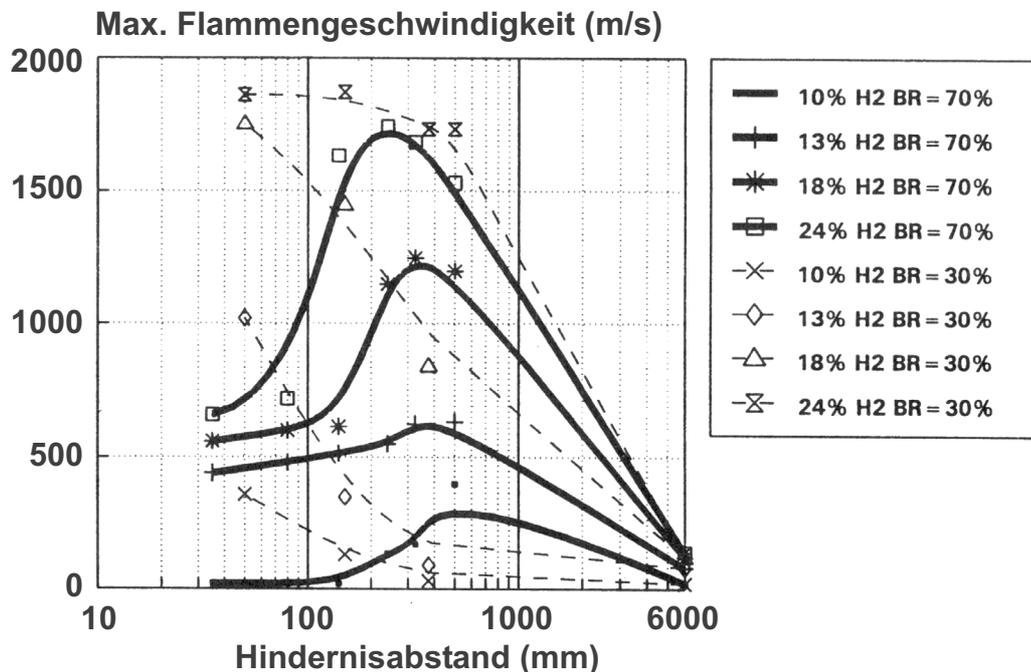


Abbildung 2.8: Maximale Flammengeschwindigkeit in Abhängigkeit der Blockierrate und des Hindernisabstands, [Bea94]. Daten bei Hindernisabstand 6000 mm entspricht Rohr ohne Hindernissen.

se Blockierraten in Abhängigkeit der Gemischsensitivität einen optimalen Abstand.

Die dargestellten gas- und fluiddynamischen Rückkopplungsmechanismen können nicht getrennt voneinander betrachtet werden. Der in Abbildung 2.6 (Seite 22) eingezeichnete “Particle Path” (PP) gibt den zeitlichen Verlauf der Strömungsbewegung wieder ($U = \partial x_{PP}/\partial t$). Dabei ist zu erkennen, dass sich die an der Flammenfront generierten Druckwellen auch beschleunigend auf die Expansionsströmung auswirken. Die oben ausgeführten gas- und fluiddynamischen Rückkopplungsmechanismen zur Flammenbeschleunigung sind in Abbildung 2.9 graphisch zusammengefasst. Der gasdynamische Rückkopplungskreis dominiert unmittelbar am Anfang der Flammenbeschleunigung, da sich Druckwellen wesentlich schneller ausbreiten, als sich die Turbulenz der Strömung ausbildet. Mit zunehmender Flammengeschwindigkeit dominiert der Einfluss der fluiddynamischen Rückkopplung gegenüber der gasdynamischen Rückkopplung [LM80].

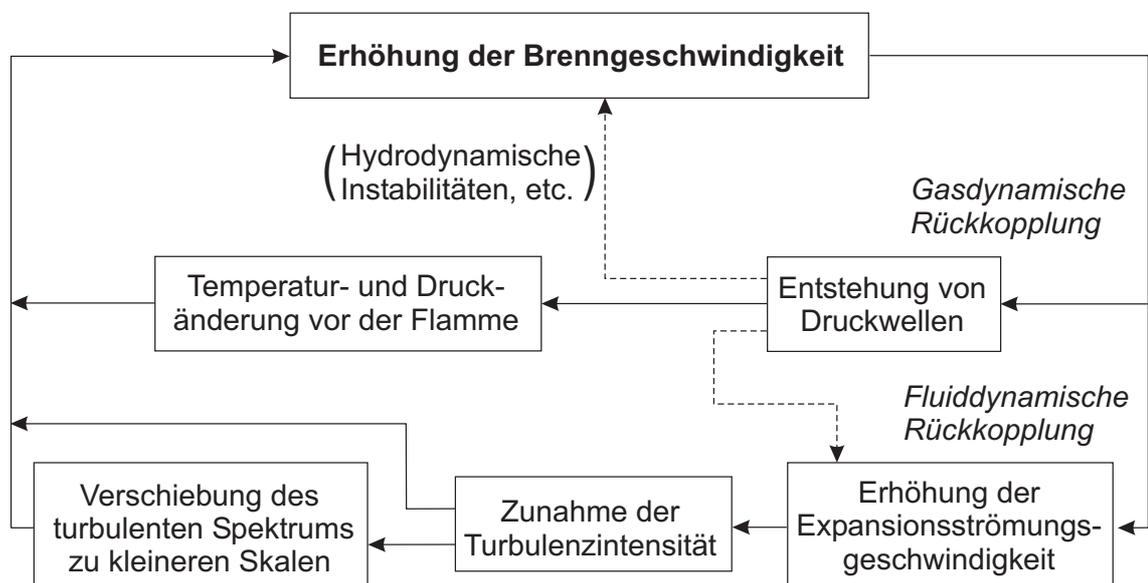


Abbildung 2.9: Rückkopplungsmechanismus zur Beschreibung der Flammenbeschleunigung (Erweiterung des Mechanismus von Brehm [Bre87]).

2.2.3 Schallnahe Deflagration

Die Ausbreitung sehr schneller deflagrativer Flammen stellt das am wenigsten verstandene Regime der vorgemischten Flammenausbreitung dar. In der Vergangenheit wurden zwar vielfach Versuche unternommen, die maximal mögliche deflagrative Ausbreitungsgeschwindigkeit in einem mit periodischen Hindernissen bestückten Explosionsrohr analytisch zu berechnen (vgl. u.a. Chan et al. [CSBM96]). Der Vergleich mit experimentellen Ergebnissen lässt bei diesen Modellen jedoch Fragen offen. Analysiert man die deflagrative Verbrennung anhand der in Kapitel 2.1.2 hergeleiteten Beziehungen, so kann man feststellen, dass eine langsame Deflagration aufgrund der geringen Steigung der Rayleigh-Gerade mit der Rankine Hugoniot Kurve für eine bestimmte Gemischzusammensetzung – ausgedrückt durch die zugeführte Wärmemenge Q – zwei Schnittpunkte besitzt. Dies ist in Abbildung 2.10 für eine zugeführte Wärmemenge $Q = 4$ (entsprechend einem 16 vol % H_2 -Luft Gemisch) und der einer Machzahl Ma_2 entsprechenden Rayleigh-Geraden exemplarisch dargestellt. Es kann gezeigt werden (z.B. [Wil85, Kuo86]), dass lediglich der obere der beiden Schnittpunkte eine sinnvolle Lösung für die vorgemischte Verbrennung in Explosionsrohren darstellt. Ein Verbrennung im unteren Schnittpunkt würde bedeuten,

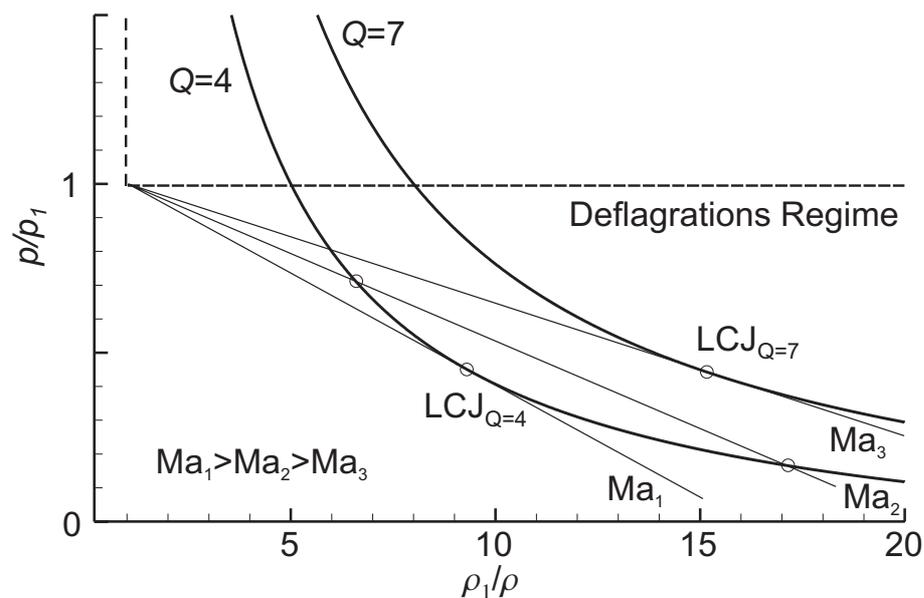


Abbildung 2.10: Deflagrationsbereich im Rankine-Hugoniot Diagramm.

dass die Reaktionsprodukte die Flammenfront mit Überschall verlassen. Da der Verbrennungsprozess jedoch immer entlang der Rayleigh-Geraden stattfinden muss, entspricht dies einem Verdünnungsstoß, der aufgrund des zweiten Hauptsatzes der Thermodynamik ausgeschlossen ist.

Beschleunigt eine deflagrative Flamme, so drückt sich die erhöhte Brenngeschwindigkeit durch eine größere Steigung der Rayleigh-Geraden aus. Das Maximum der Geschwindigkeit ist genau dann erreicht, wenn die Rayleigh-Gerade die Hugoniot-Kurve genau an einem Punkt (als Tangente) berührt. Dieser Punkt wird als unterer Chapman-Jouguet Punkt (LCJ) bezeichnet und ist dadurch gekennzeichnet, dass das Abgas relativ zur Flammenfront mit Schallgeschwindigkeit abströmt. Die dabei zugeführte Wärme wird als *kritische Wärmezufuhr* Q_{krit} bezeichnet.

Lee et al. beobachteten schnelle Deflagrationen bis zu 1000 m/s in Explosionsrohren in mit periodischen Hindernissen bestückten Rohrabschnitten (vgl. [LKF84]). Die maximal erreichbaren Flammengeschwindigkeiten waren dabei vom Rohrdurchmesser und der Hinderniskonfiguration unabhängig, d.h. nur eine Funktion der Sensitivität des Brennstoff-Luft Gemisches. In [LKC84] folgerten Lee et al. daraus, dass die maximal erreichbare Flammengeschwindigkeit lediglich von der Wandreibung und der Wärmezufuhr bestimmt wird, woraus der in der englischen Fachliteratur für dieses Verbrennungsregime gebräuchliche Name des “Choking Regimes” (thermische Blockierung) resultiert. Als Obergrenze für die Flammenausbreitung wurde dabei die Schallgeschwindigkeit eines isobar verbrannten Frischgasgemisches für die maximale deflagrative Flammenausbreitungsgeschwindigkeit angenommen, da gerade für sensitive Gemische mit einer relativ großen Wärmezufuhr die Druckänderung über der Flammenfront in erster Näherung vernachlässigt werden kann, vgl. Abbildung 2.10. Ebenfalls vernachlässigt wurde dabei die Komprimierung und Temperaturerhöhung des unverbrannten Frischgases durch eine, der Flammenfront vorauslaufende Stoßwelle (siehe Abbildung 2.11). Im relevanten Gemischbereich einer Wasserstoff-Luft Flamme führt diese Annahme lediglich zu einer Abweichung von maximal 5% der isobaren Schallgeschwindigkeit.

In der Literatur wurde eine Verbrennung am unteren Chapman-Jouguet Punkt zwar theoretisch nicht vollständig ausgeschlossen, aber auch als in der Praxis nicht realisierbar dargestellt ([Kuo86, Wil85, GB95]),

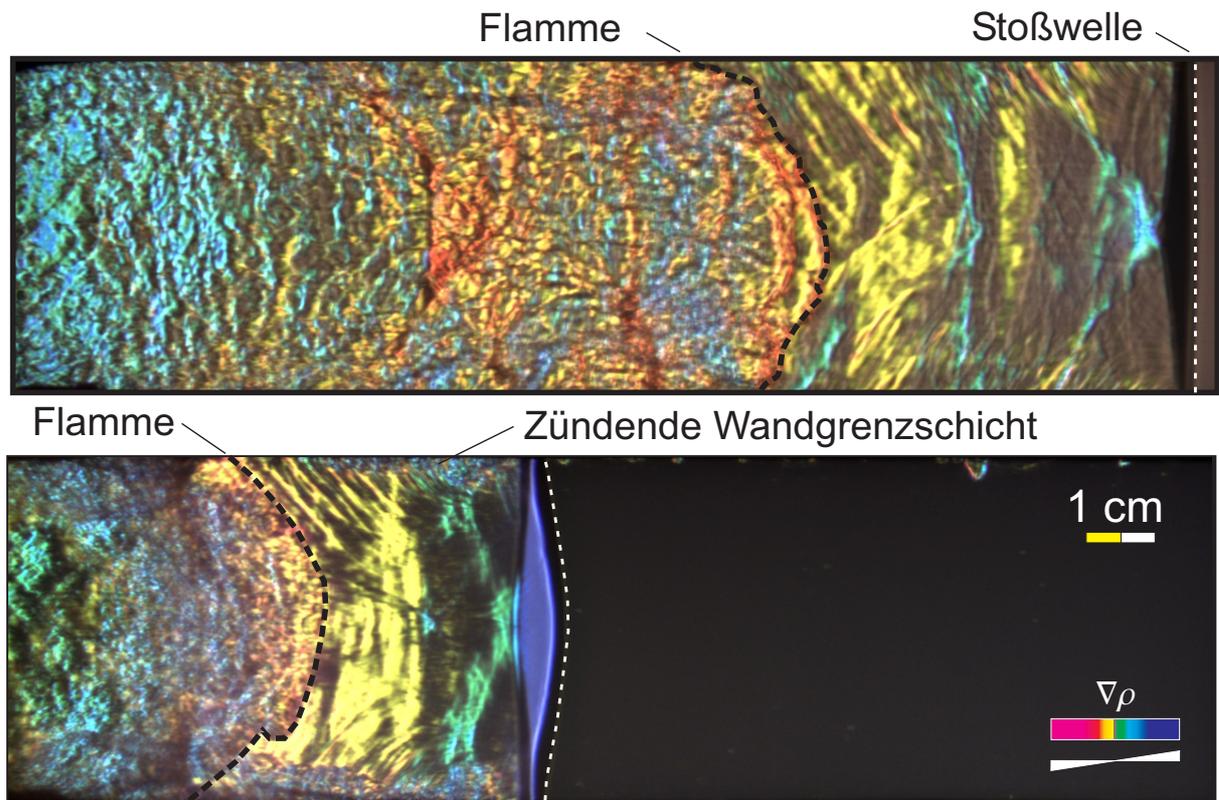


Abbildung 2.11: Farbschlierenbilder von Wasserstoff-Luft Flammen mit vorauslaufender Stoßwelle unmittelbar vor dem Übergang in die Detonation. Gemischzusammensetzung 44 vol % H_2 , Flammengeschwindigkeit 1150 m/s (oben) und 22 vol % H_2 , Flammengeschwindigkeit 1200 m/s (unten). Durch die höhere Ausbreitungsgeschwindigkeit und die sensitivere Gemischzusammensetzung im unten dargestellten Fall setzt bereits vor der eigentlichen Flammenfront eine Zündung der Wandgrenzschichten ein.

wodurch in der deutschsprachigen Literatur bezogen auf die Abströmgeschwindigkeit des Abgases oft der Begriff der schallnahen Deflagration verwendet wurde. Die Existenz dieses Punktes wurde erstmals von Dupre et al. [DPLK88] in einem idealisierten Experiment nachgewiesen. Sie beobachteten eine voll ausgebildete Detonation in einem Rohr, in dem einzelne Rohrabschnitte mit Druckwellen-absorbierendem Material verkleidet waren. Dadurch wurden die für die Ausbreitung einer Detonationsfront notwendigen Transversalwellen (siehe Kapitel 2.3) so stark abgeschwächt, dass sich die Flamme von der Druckwelle löste und als quasi eindimensionale (gerade) Reaktionsfront der Stoßwelle folgte. Chue et

al. [CCL93] analysierten diesen Versuch und stellten anhand des Rankine-Hugoniot Diagramms ein Modell zur Berechnung der maximalen Flammengeschwindigkeit auf, mit dem die gemessenen Flammengeschwindigkeit sehr genau wiedergegeben wurden. Angenommen wurde dabei, dass sich der thermodynamische Zustand zwischen der Stoßwelle und der Flammenfront nicht ändert und dass das Abgas sich – im Laborsystem betrachtet – nicht bewegt, was bei diesem idealisierten Versuch näherungsweise zutrifft.

Mit dieser Annahme berechneten auch Lee et al. die experimentell ermittelten Flammengeschwindigkeiten der oben erwähnten Versuche. Auch hier ergab sich eine sehr gute Übereinstimmung, weshalb die reale Existenz des unteren Chapman-Jouguet Punktes mit großer Wahrscheinlichkeit angenommen wird. Die mit diesem Modell ermittelten maximalen Flammengeschwindigkeiten stimmen sehr gut mit der von Lee et al. berechneten isobaren Schallgeschwindigkeit überein, weshalb diese im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls als Referenzgröße verwendet wird. Chue et al. stellten in ihrer Analyse ebenfalls fest, dass die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Chapman-Jouguet Deflagration im Bereich von $\kappa = 1.1$ bis 1.5 näherungsweise als die Hälfte der Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Chapman-Jouguet Detonation abgeschätzt werden kann.

In Abbildung 2.11 ist die integrale Struktur der Flamme sowie der Stoßwellen zweier schneller Deflagrationen gezeigt. Die Flammenstruktur kann dabei zwei unterschiedliche Formen annehmen: Zum einen kann, wie in der in Abbildung 2.11 (oben) gezeigten Messung dargestellt, die Flammenfront eine “parabelförmige” gewölbte Gestalt annehmen. Zum anderen besteht auch die Möglichkeit, dass bei noch höheren Ausbreitungsgeschwindigkeiten und durch eine sensitivere Gemischzusammensetzung, wie in Abbildung 2.11 (unten) dargestellt, die hochturbulenten Scherschichten unmittelbar hinter der Stoßfront zusätzlich zu zünden beginnen. Dieses Stadium wurde von Brehm [Bre87] und von Shepherd und Lee [SL92] als letztes Stadium der deflagrativen Verbrennung vor dem Übergang in die Detonation bezeichnet, was auch bei dem in Abbildung 2.11 (unten) dargestellten Versuch bestätigt werden konnte.

2.3 Detonative Mechanismen der Flammenausbreitung

2.3.1 Eindimensionale Detonationstheorien und ihre Anwendung

2.3.1.1 Das Modell von Chapman und Jouguet

In der klassischen Detonationstheorie nach Chapman [Cha99] und Jouguet [Jou05] wurde angenommen, dass die Zündung des Brennstoff-Luft Gemisches durch die Temperaturerhöhung und Kompressionen einer starken Stoßwelle erfolgt und die Flamme sich als infinitesimal dünne Reaktionsfront unmittelbar hinter der Stoßwelle befindet. Die durch die Reaktion freigesetzte Wärmemenge erhält dabei die Stärke der Stoßfront aufrecht. Jouguet stellte anhand dieser Theorie ein Stabilitätskriterium auf, das besagt, dass sich dieses System nur stabil ausbreiten kann, wenn sich das Abgas relativ zur Stoß-/Flammenfront mit Schallgeschwindigkeit – wie bereits im Fall der in Kapitel 2.2.3 beschriebenen Chapman-Jouguet Deflagration – bewegt. Dadurch kann eine Störung, die hinter der Front entsteht und sich maximal mit Schallgeschwindigkeit ausbreitet, unter keinen Umständen in das Stoß/Flamme-System der Detonationsfront vordringen.

Diese Voraussetzung kann nur erfüllt werden, wenn die Rayleigh-Gerade, analog zu dem deflagrativen Fall, die Tangente an die Rankine-Hugoniot Kurve im Detonationsbereich des Rankine-Hugoniot Diagramms bildet. Der Berührungspunkt wird als oberer Chapman-Jouguet (CJ) Punkt bezeichnet und stellt in dieser idealisierten Vorstellung die kleinstmögliche Detonationsgeschwindigkeit einer Detonationsfront dar. Der Bereich kleinerer Geschwindigkeiten unterhalb des CJ Punktes im Detonationsbereich, auch Bereich der schwachen Detonationen genannt, repräsentiert den Fall einer stoßfreien Überschallverbrennung, die bei der vorgemischten instationären Verbrennung in Explosionsrohren nicht realisierbar ist.

Die Zustandsänderung der CJ Detonation ist exemplarisch in Abbildung 2.12 dargestellt. Die Druckspitze p_{VN} des Verdichtungsstoßes wird als *von Neumann-Spike* bezeichnet und ergibt sich aus der Verlängerung der Rayleigh-Geraden bis zu dem Punkt, an dem sie die Rankine-Hugoniot Kurve für die Stoßwelle ($Q = 0$) schneidet. Es kann gezeigt werden [Bar75],

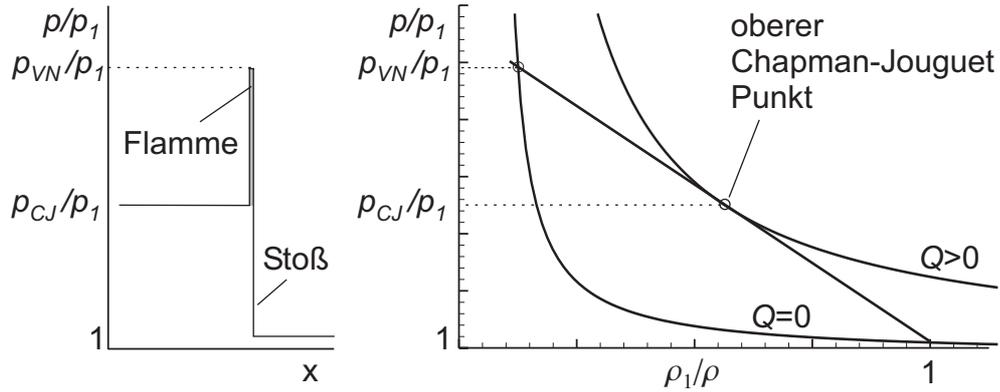


Abbildung 2.12: Schematischer Druckverlauf einer Chapman-Jouguet Detonation (links) sowie entsprechende Zustandsänderung im Rankine-Hugoniot Diagramm (rechts), nach [Wet93].

dass unter der Voraussetzung $Ma_{CJ}^2 \gg 1$ folgender Zusammenhang zwischen dem Druck p_{CJ} hinter der Detonationsfront und dem von Neumann-Spike p_{VN} gilt:

$$p_{CJ} \approx p_1 + \frac{1}{2}(p_{VN} - p_1) . \quad (2.32)$$

Obwohl das CJ Detonationsmodell die Vorgänge innerhalb der eigentlichen Detonationsfront bestehend aus Stoß und Flamme nicht berücksichtigt, eignet es sich besonders, um die thermodynamischen Zustände des verbrannten Gases über die in Kapitel 2.1.2 dargelegten Reaktionsfrontgleichungen zu bestimmen. Mit der zusätzlichen Annahme, dass sich das unverbrannte Gas vor der Stoßfront in Ruhe befindet, lässt sich auch die Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Detonationsfront u_{CJ} berechnen, deren Richtigkeit in der Literatur für zahlreiche Gemischzusammensetzungen experimentell bestätigt ist. Aus den Reaktionsfrontgleichungen kann man die Ausbreitungsmachzahl einer CJ Detonation Ma_{krit} wie folgt ableiten [Bar75]:

$$Ma_{krit} = \sqrt{1 + \frac{\kappa + 1}{2} Q} + \sqrt{\frac{\kappa + 1}{2} Q} . \quad (2.33)$$

Eine exakte Bestimmung der CJ Machzahl Ma_{krit} ist jedoch nur möglich, wenn die Temperaturabhängigkeit der Wärmezufuhr Q berücksichtigt wird. Ebenso muss bei realen Vorgängen die Änderung des Isentropenexponenten κ und der Wärmekapazität c_P bei den Zustandsänderungen

über die Reaktionsfront mitberücksichtigt werden. Ein weiteres Problem bei dieser Berechnung stellt der unbekannt Anteil der aufgrund des chemischen Gleichgewichtszustandes im Abgas vorhandenen, unverbrauchten Brenngase dar, wodurch der Betrag der zugeführten chemischen Wärme auch von dem thermodynamischen Endzustand abhängt. Daher ist eine exakte Lösung nur iterativ zu bestimmen. Eine detaillierte Übersicht über verschiedene Iterationsmethoden findet sich in [Kuo86]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das auf der Methode der Element-Potentiale basierende Programm STANJAN v.3.84 [Rey86] verwendet, um den sich einstellenden chemischen Gleichgewichtszustand hinter der Detonationsfront sowie deren Ausbreitungsgeschwindigkeit zu berechnen.

2.3.1.2 Das Modell von Zel'dovich, von Neumann und Döring

Eine im Vergleich zum CJ-Modell wesentlich genauere Beschreibung von Detonationsfronten stellt ein ebenfalls eindimensionales, unabhängig voneinander von Zel'dovich, v. Neumann und Döring entwickeltes Detonationsmodell dar [Zel50, vN42, Dör43]. Dieses sogenannte *ZND-Modell* gilt als Grundlage der heutigen Detonationstheorie. Im Gegensatz zu dem CJ-Modell liefert es durch Einbeziehung chemischer Reaktionsvorgänge eine Aussage, *wie* der Endzustand hinter einer Detonationsfront erreicht wird.

Zel'dovich, von Neumann und Döring gingen davon aus, dass das durch die Stoßwelle komprimierte und erhitzte Brennstoff-Luft Gemisch erst nach einer Induktionszeit τ_i zündet. Der thermodynamische Zustand in der Induktionszeit – auch von Neumann (VN) Zustand genannt – ist festgelegt durch die mittels der Reaktionsfrontgleichungen (2.3-2.4) festgelegten Beziehungen für einen Verdichtungsstoß, der sich mit CJ Detonationsgeschwindigkeit ausbreitet. Während dieser Induktionszeit bleibt der thermodynamische Zustand des Gemisches nahezu konstant, während die Konzentration der freien Radikale (insbesondere HO_2 für Wasserstoff-Luft Gemische) kontinuierlich - wenn auch in geringen Mengen – ansteigt. Begünstigt durch die Radikalbildung erfolgt eine schnelle Energiefreisetzung zusammen mit der Erhöhung der Temperatur. Hinter der Reaktionsfront, die verglichen zum CJ-Modell eine endliche Ausdehnung hat, stellt sich der gleiche Zustand wie im CJ-Modell ein. Die Induktionszeit τ_i eines Gemisches sowie die für die Energiefreisetzung benötigte Zeit τ_r wird oft über einen Arrhenius-

Ansatz ausgedrückt [SWS99]:

$$\tau_i = A_i \exp \frac{E_i}{RT} \quad \text{bzw.} \quad \tau_r = A_r \exp \frac{E_r}{RT}, \quad (2.34)$$

wobei $E_{i/r}$ die Aktivierungsenergie darstellt und $A_{i/r}$ ein gemischabhängiger Parameter ist.

Durch die Expansion des heißen verbrannten Gases nimmt der Druck in der Reaktionszone stark ab, wodurch es wiederum zur lokalen Druckwellenbildung in der Reaktionsfront kommt. Diese Druckwellen verstärken die führende Stoßwelle und wirken einer möglichen Abschwächung der führenden Stoßwelle durch Reibungs- und Energieverluste entgegen. Der Verlauf der thermodynamischen Zustandsgrößen sowie ausgewählter Spezieskonzentration entlang der Detonationsfront ist exemplarisch für ein 20 vol % H₂-Luft Gemisch in Abbildung 2.13 dargestellt.

Da über das CJ-Modell die Detonationsgeschwindigkeit und somit auch der thermodynamische Zustand hinter der Stoßfront bekannt ist, können

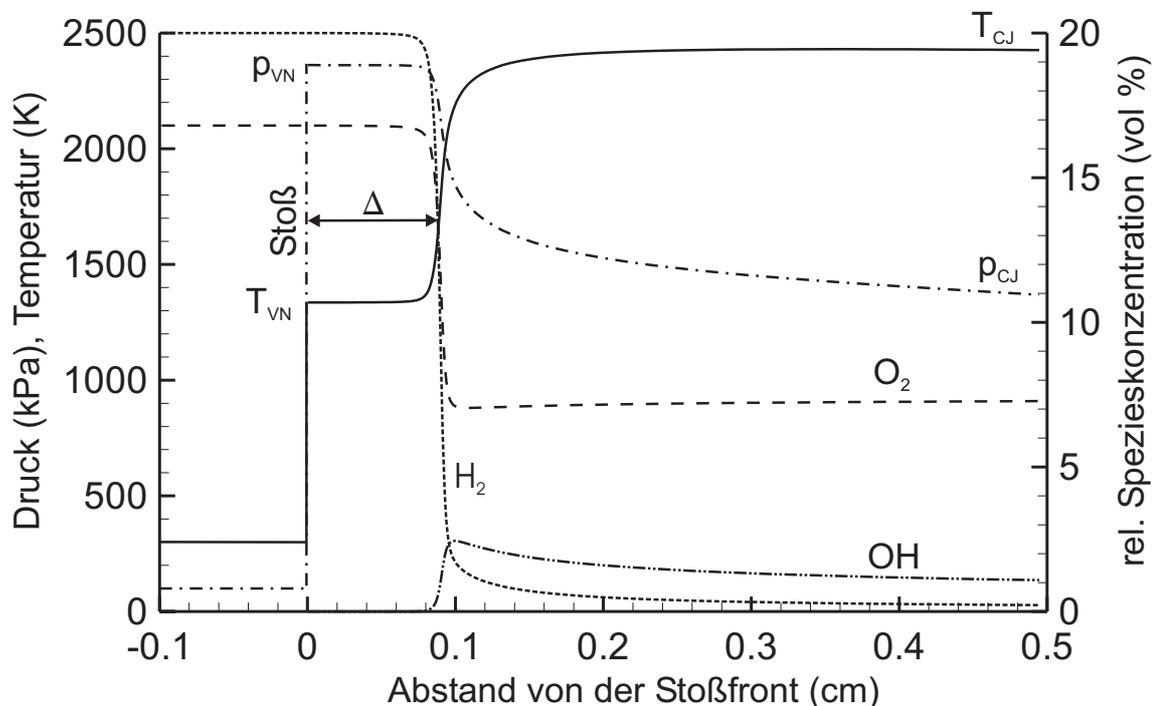


Abbildung 2.13: Verlauf thermodynamischer Zustandsgrößen und Spezieskonzentrationen im ZND-Modell für eine 20 vol % H₂-Luft Flamme mit einer Detonationsgeschwindigkeit von 1705 m/s.

mittels detaillierter Reaktionskinetik die Vorgänge innerhalb der Detonationsfront berechnet werden. Westbrook [Wes82a] nahm an, dass das Brennstoff-Luft Gemisch für reaktionskinetische Betrachtungen während der Reaktionszeit als konstantes Volumen (CV) behandelt werden kann, was im Rankine-Hugoniot Diagramm einer vertikalen Linie ausgehend vom VN-Zustand entspricht. Shepherd [She86] entwickelte ein wesentlich genaueres Modell, in dem die Gleichungen für den Druck, die Dichte sowie die Gemischzusammensetzung gleichzeitig über der Zeit (bzw. dem Abstand von der Stoßwelle) vom VN Zustand (Start der Reaktion) entlang der entsprechenden Rayleigh-Geraden bis zum oberen CJ Punkt (vollständige Reaktion) integriert wird.

Dieses Modell wurde in einem FORTRAN Code (“ZND-Code”) umgesetzt, der auf eindimensionalen reaktiven Eulergleichungen von Fickett und Davis [FD79] basiert. Die Reaktionsraten der einzelnen Spezies dabei werden mittels dem Reaktionskinetik-Programm CHEMKIN II [KRM89] berechnet, das in den ZND-Code integriert ist². Da die Detonationsfronten gewöhnlicherweise über dem Ort und nicht über der Zeit dargestellt werden, wird in der Folge die Induktionslänge Δ – auch Reaktionszonenlänge genannt – verwendet, die mit der Induktionszeit über die Beziehung $\Delta = \tau_i(u_{CJ} - u_{VN})$ verknüpft ist, wobei u_{VN} die Strömungsgeschwindigkeit hinter der Stoßwelle darstellt. Die Reaktionszonenlänge bzw. Reaktionszeit ist in der Literatur unterschiedlich definiert. Eine allgemeine Zusammenfassung dieser Definitionen findet sich bei Akbar et al. [AKSS98], im Zusammenhang mit ihrer Interpretation in Bezug auf Detonationsfronten sei auf Shepherd [She86] verwiesen. Im Rahmen dieser Arbeit wird als Reaktionszonenlänge bzw. Induktionszeit, wie von Schultz und Shepherd [SS99] vorgeschlagen, der Abstand zwischen Stoßwelle und dem Wendepunkt des Temperaturverlaufs verwendet. Dieser Punkt kann näherungsweise gleich der maximalen Energiefreisetzung sowie der maximalen OH-Konzentration gesetzt werden, Abbildung 2.13.

Der Reaktionsablauf bei Brennstoff-Luft Detonationen erfolgt über zahlreiche Einzelreaktionen. Warnatz und Maas [MW88, WMD97] geben für den Reaktionsablauf der Wasserstoff-Sauerstoff Reaktion 37 Einzelreaktionen

²Herrn [Professor J.E. Shepherd](#), California Institute of Technology, und seinen Mitarbeitern sei an dieser Stelle herzlich gedankt für die Überlassung des ZND-Codes sowie der Unterstützung der im Rahmen dieser Arbeit dargestellten Anwendung.

an. Bei dem Reaktionsablauf spielen insbesondere die reaktiven Zwischenprodukte – auch Radikale genannt – eine bedeutende Rolle. Im Falle einer reinen Wasserstoff-Sauerstoff Oxidation sind dies vornehmlich H, OH, HO₂ und H₂O₂. Simulationen mit dem ZND-Code für verschiedene Wasserstoff-Luft Gemische haben gezeigt, dass unmittelbar hinter der Stoßwelle als erstes die Bildung von HO₂ und H einsetzt, siehe Abbildung 2.14. Westbrook [Wes82b] gab als Startreaktion im Wasserstoff-Induktionsprozess die Reaktion



an, die lediglich eine Aktivierungsenergie von 57.8 kcal/mol benötigt. Die dabei freigesetzten H Radikale gehen schnell eine Verbindung mit den Sauerstoff Molekülen über die Kettenverzweigungsreaktionen



ein. Je nach Temperatur dominiert jeweils eine der in (2.36) angegebenen Re-

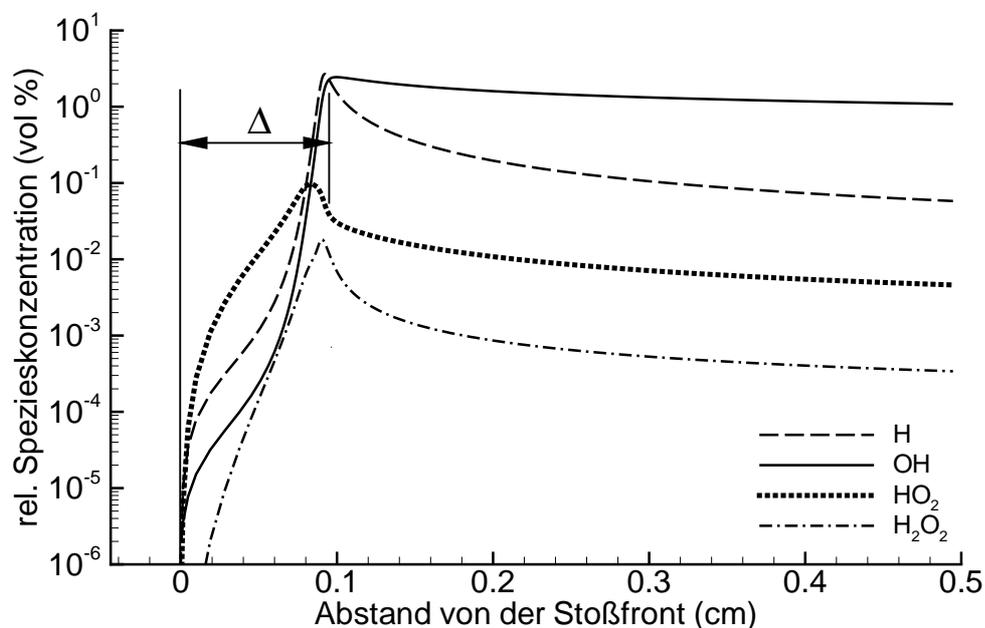


Abbildung 2.14: Verlauf der Gemischkonzentration über der Detonationsfront der für die Detonation von Wasserstoff-Luft Gemischen bedeutenden Radikale, berechnet mit ZND.

aktionen. Unterhalb einer Temperatur von $T = 1350$ K überwiegt die Bildung von HO_2 . Bei einem 13 vol % H_2 -Luft Gemisch beträgt die Flammtemperatur ca. 1300 K. Bei höheren Gemischkonzentrationen überwiegt die OH-Produktion, wodurch sich, wie von Lee et al. [LKF84] experimentell nachgewiesen, für höhere Gemischkonzentrationen deutlich größere Flammgeschwindigkeiten einstellen.

Bei langsam ablaufenden Experimenten ist die Zeit des gesamten Verbrennungsablaufes lang, verglichen mit der Diffusionszeit der charakteristischen Spezies. Somit kann ein Großteil der OH-Radikale z.B. and der Wand des Versuchsbehälters verloren gehen. Dies führt zu einer Kettenabbruchsreaktion, die hindernd auf den Reaktionsfortschritt wirkt. Bei Detonationen hingegen können diffusive Einflüsse vernachlässigt werden, so dass das HO_2 Radikal entweder mit dem H Atom



oder mit sich selbst



zur Produktion von OH reagiert, wobei das in Reaktion (2.38) entstandene H_2O_2 unmittelbar zu OH dissoziiert:



Das OH Radikal hat eine entscheidende Bedeutung bei der Dissoziation von H_2 zu H_2O , die vorwiegend über die Reaktion



stattfindet. Der chemische Reaktionsablauf einer Wasserstoff-Luft Detonation lässt sich deshalb in zwei Phasen unterteilen, die Induktionsphase und die daran anschließende Hauptreaktion. Zu Beginn der Induktionsphase ist die Bildung von HO_2 von entscheidender Bedeutung, wohingegen am Ende der Reaktionszone der Reaktionsablauf über die Standard-Verzweigungsreaktionen (siehe u.a. [WMD97]) unter Einbeziehung des OH Radikals dominiert. Die anfängliche Bildung von HO_2 spielt insbesondere

eine Bedeutung, wenn dem Wasserstoff-Luft Gemisch beispielsweise Kohlenwasserstoffe beigemischt werden. Die Reaktionsraten des H Radikals mit vielen C_xH_y Molekülen ist größer, als die gerade am Anfang des Reaktionsablaufes wichtigen Reaktionen (2.36). Kohlenwasserstoffe haben dabei einen erheblichen Einfluss auf die H_2 Oxidation durch die Reduzierung der Kettenverzweigungsrate. Der Einfluss von Kohlenwasserstoffen auf den Übergang von der Deflagration in die Detonation ist exemplarisch anhand von Methan (CH_4) im Kapitel 5.3 gezeigt.

Entscheidende Bedeutung bei der Simulation von Detonationsfronten mit dem ZND-Code haben dabei die eingesetzten detaillierten Reaktionsmechanismen. Schultz und Shepherd [SS00, SS99] untersuchten 19 Reaktionsmechanismen und validierten sie anhand von Zündverzugszeiten, die von 14 verschiedenen Autoren experimentell in Stoßwellenrohren bestimmt wurden. Um stets für die vorliegenden Bedingungen den bestmöglichen Mechanismus zu verwenden, wurden im Rahmen dieser Arbeit zwei verschiedene Mechanismen eingesetzt. Obwohl der Mechanismus von Baulch [BCC⁺94] insgesamt die besten Eigenschaften bei reinen Wasserstoff-Luft Gemischen aufweist [She00], wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit der Mechanismus von Lutz [LKM⁺88] verwendet, da dieser gerade bei den mageren Gemischen und niedrigeren Temperaturen (≈ 1200 K) im VN-Zustand genauere Ergebnisse liefert. Für die ebenso untersuchten tertiären Gemischen zeigte sich (vgl. [SS00]), dass mit dem Mechanismus von Konnov [Kon00] der Detonationsverlauf am besten abgebildet werden kann. Über einem Temperaturbereich von $T > 1200$ K liegt die Abweichung der in Stoßwellenrohren gemessenen Induktionszeiten $\tau_{i,exp}$ zu den mit allen Mechanismen berechneten $\tau_{i,sim}$ innerhalb eines Bereichs bis zu einem Abweichungsfaktor $\log(\tau_{i,sim}/\tau_{i,exp})$ von 1.25 [SS00].

Kritisch zu bewerten sind jedoch Berechnungen mit niedrigeren Temperaturen: Für $1000 \text{ K} < T < 1200 \text{ K}$ liegen die berechneten Werte der Induktionszeiten innerhalb eines Bereiches von einem Abweichungsfaktor von bis zu 10, bei Temperaturen nahe der Zündgrenze von Wasserstoff-Luft Gemischen ($800 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$) bei bis zu 100. Die Temperaturen im VN-Zustand der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Detonationen lag stets über 1200 K , wodurch die Simulationen der Detonationsfronten als sehr genau betrachtet werden können, zumal – um zusätzliche numerische Fehler

zu vermeiden – die relative bzw. absolute Genauigkeit der Integrationsroutinen (vgl. [SW79]) für alle Berechnungen auf einen Wert von 1×10^{-10} bzw. 1×10^{-8} festgelegt wurde. Aufgrund der großen Unsicherheiten bei niedrigen Temperaturen wurde im Rahmen dieser Arbeit die Simulation des Zündprozesses durch eine Stoßwelle vor einer Deflagration, wie in Abbildung 2.11 (Seite 30) dargestellt, nicht aufgegriffen. Bei Simulationen von Detonationen wurde die Richtigkeit des Ergebnissen überprüft, indem die mit ZND berechneten Drücke und Temperaturen am Ende der Reaktionszone mit den von STANJAN berechneten CJ-Bedingungen verglichen wurden.

2.3.2 Zellulare Detonationsstruktur

Eine eindimensionale Detonation nach dem CJ- oder ZND-Modell kann aus Stabilitätsgründen unter realen Umständen nicht über einen längeren Zeitraum existieren. Aufgrund von unvermeidbaren Störungen an einer hypothetisch geraden, stoßinduzierten Reaktionsfront (z.B. durch Inhomogenitäten im Zündverzug aufgrund von Temperaturunterschieden) bilden sich lokale Ausbuchtungen an der Reaktionszone aus. Diese Inhomogenitäten werden durch Druckwellen quer zur Bewegungsrichtung des Hauptstoßes ausgeglichen. Es entsteht zunehmend eine dreidimensionale, zellulare Struktur bestehend aus einem longitudinal und transversal laufenden Stoßsystem (vgl. Abbildung 2.15).

Die transversalen Stoßwellen interagieren sowohl mit den Wänden des Ver-

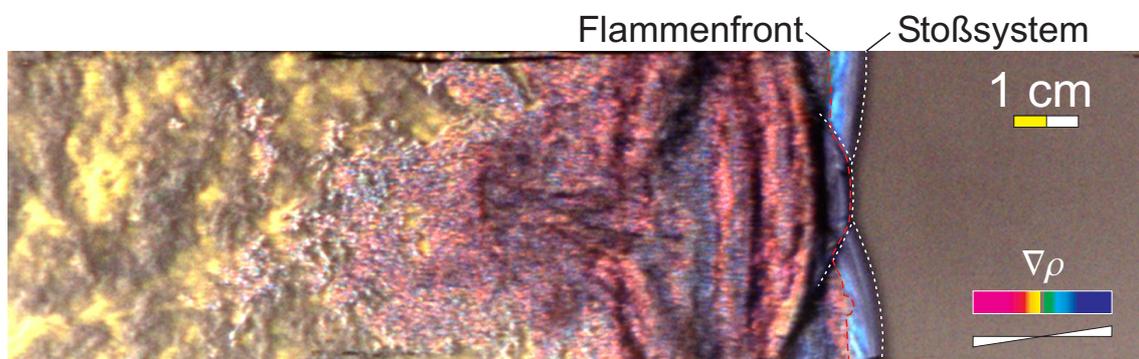


Abbildung 2.15: Farbschlierenbild einer Wasserstoff-Luft Detonation. Gemischzusammensetzung 18.5 vol % H_2 , Flammengeschwindigkeit 1650 m/s.

suchsbehälters, als auch mit sich selbst. Es bildet sich ein System von periodischen Transversalwellen quer zu dem führenden Hauptstoß aus, vgl. Kapitel 2.4. Dieses Stoßsystem ist für eine zweidimensionale Detonationsausbreitung schematisch in Abbildung 2.16 dargestellt.

Durch die Überlagerung des longitudinal laufenden Hauptstoßes H mit einem quer dazu laufenden Transversalstoß Q entsteht ein Machstamm M. Infolge der Stoßüberlagerung auf dem Machstamm liegt in dem von ihm überstrichenen Frischgas ein höherer Druck sowie eine höhere Temperatur vor, als dies bei dem longitudinal verlaufenden Hauptstoß der Fall ist. Die Zündung des Frischgasgemisches (dargestellt durch die Flammenfront F) erfolgt entsprechend der Stärke des sie auslösenden Stoßes aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit der Induktionszeit hinter dem Machstamm wesentlich eher, als hinter dem Hauptstoß. Der Punkt, an dem der Hauptstoß, die querlaufende Stoßwelle und der Machstamm aufeinandertreffen, wird als Tripelpunkt T bezeichnet. Das dabei entstandene Stoßsystem wird Dreifronkonfiguration genannt. Die Trajektorien der Tripelpunkte (gestrichelte Linien in Abbildung 2.16) bilden ein für die Detonationsausbreitung charakteristisches rautenähnliches Muster – die sogenannten Detonationszellen – deren Ausdehnung quer zur Ausbreitungsrichtung als Detonationszellenbreite λ bezeichnet wird.

Die Transversalstöße einer Detonation tragen stark zur Stabilität einer sich

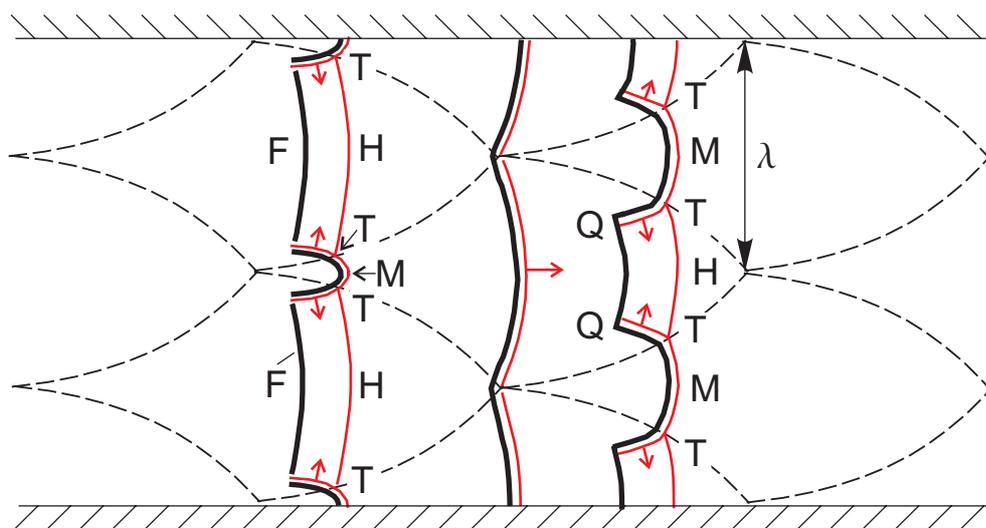


Abbildung 2.16: Zweidimensionale Struktur einer Detonation.

ausbreitenden Detonation bei (vgl. auch den in Kapitel 2.2.3 beschriebenen Versuch von Dupre et al. [DPLK88]). Gerade bei Detonationen von wenig sensitiven Gemischen nimmt die Induktionszeit im VN-Zustand stark zu, wodurch hinter dem Hauptstoß die Tendenz zur vollständigen Entkopplung von Stoß und Flamme vorliegt [Pan97]. Treffen jedoch zwei Transversalstöße aufeinander, so ergibt sich (an der Spitze einer Detonationszelle) eine lokale Punktexplosion, die eine starke und weit über den CJ-Zustand komprimierte Druckwelle (“Blast-wave”) erzeugt, wobei die Stoßwellen quer zur Ausbreitungsrichtung der Detonationsfront die Machstämme für die benachbarten Hauptstöße bilden. In der Mitte einer Detonationszelle in Längsrichtung tritt dieser Effekt an der darunter- bzw. darüberliegenden Zelle auf. Der Machstamm wird zum Hauptstoß und die querlaufenden Stoßwellen “schließen” die Detonationszelle. Für detaillierte Darstellungen der lokalen Vorgänge an der Detonationsfrontstruktur, die zum Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse nicht erforderlich sind, sei an dieser Stelle auf Arbeiten von Wetzel [Wet93], Schöffel [Sch88] und insbesondere Fickett und Davis [FD79] verwiesen.

Aufgrund der unterschiedlichen Stoßstärke von Hauptstoß und Machstamm ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Detonationsfront innerhalb einer Detonationszelle nicht homogen. Unmittelbar nach der Kollision der Transversalstöße kann eine longitudinale Ausbreitungsgeschwindigkeit der Front je nach Gemischzusammensetzung bis zu 140% der CJ-Detonationsgeschwindigkeit betragen. Die Geschwindigkeit der Front während der Ausbildung einer Detonationszelle nimmt kontinuierlich ab, so dass am Zellende die Ausbreitungsgeschwindigkeit bis zu einem Wert von 60% der CJ-Detonationsgeschwindigkeit abfallen kann [GED98, GED00, GDO99a]. Die CJ-Detonationsgeschwindigkeit liegt dabei unmittelbar nur in der Mitte der Detonationszelle vor und ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten über der Länge einer Detonationszelle. Aufgrund dieser starken Geschwindigkeitsunterschiede ist eine Detonationsfront als pulsierendes und somit stark dynamisches Gebilde zu betrachten, vgl. Abbildung 2.15. Lee [Lee84] unterscheidet deshalb zwischen den statischen Parametern einer eindimensionalen Detonation und den sogenannten dynamischen Detonationsparametern, wobei er als wichtigste Größe die Zellweite λ angibt. Dabei ist zu beachten, dass λ in ausreichend großen Behältern ($D \gg \lambda$) lediglich von der Gemischzusammensetzung

und dem thermodynamischen Zustand des unverbrannten Gases abhängt. Williams et al. [WBO96] zeigten anhand von numerischen Simulationen, dass die dreidimensionale Detonationszellweite gleich der des in Abbildung 2.16 dargestellten zweidimensionalen Falles gesetzt werden kann.

Die Detonationszellweite λ kann direkt experimentell bestimmt werden. An einer mit Ruß geschwärzten Behälterwand lassen sich die Trajektorien der Tripelpunkte (siehe Abbildung 2.16) verfolgen und somit die Detonationszellenweite vermessen. Der physikalische Grund für das Entstehen dieser Muster auf den Rußschrieben ist bis heute nicht vollständig geklärt [She86, She99, She00]. Theorien existieren (u.a. [Pan97]), dass sich turbulente Scherschichten aufgrund unterschiedlicher Abströmgeschwindigkeiten hinter dem Machstamm und dem Hauptstoß ausbilden, die zu einem linienförmigen Abtrag der Rußschicht führen. Festzustellen ist nur, dass die Detonationswelle den Ruß auf der Rohrwand umverteilt und eine Struktur hinterlässt, die mit den Trajektorien der Tripelpunkte verknüpft ist. Ein Beispiel eines in einem runden Rohr gemessenen Rußschriebs sowie die entsprechenden Ansichten der dreidimensionalen Ausbreitung der Transversalstöße in einem runden Rohr ist in Abbildung 2.17 dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Detonationszellen entgegen der oben dargelegten Theorie keine regelmäßige zelluläre Struktur aufweisen. Diese Unregelmäßigkeiten können im Extremfall dazu führen, dass keine einheitliche Detonationszellenweite mehr erkennbar ist. Wasserstoff-Luft Gemische weisen im allgemeinen keine regelmäßige Struktur auf, die Detonationszellen sind aber deutlich zu erkennen [BES82]. Ersetzt man jedoch den Stickstoff in der Luft durch ein Edelgas wie z.B. Argon, so besitzt nahezu jede Detonationszelle eine identische Struktur [She00, Pan97].

Unter welchen Voraussetzungen eine Detonationsfront eine regelmäßige Struktur besitzt, ist bis heute nicht mit letzter Gewissheit geklärt. Die Unterschiede bei $\text{H}_2\text{-O}_2$ Gemischen unter Verdünnung mit N_2 bzw. Ar wurden von Lefebvre et al. [LOK92, LOKvT93] sowie von Pantow [Pan97] mit dem Einfluss der Wärmekapazitäten erklärt. Argon ändert seine Wärmekapazität im Vergleich zu Stickstoff mit der Temperatur nicht und hat zudem eine geringere Wärmekapazität, wodurch die Temperatur im VN-Zustand fast doppelt so groß ist wie im Fall eines H_2 -Luft Gemisches.

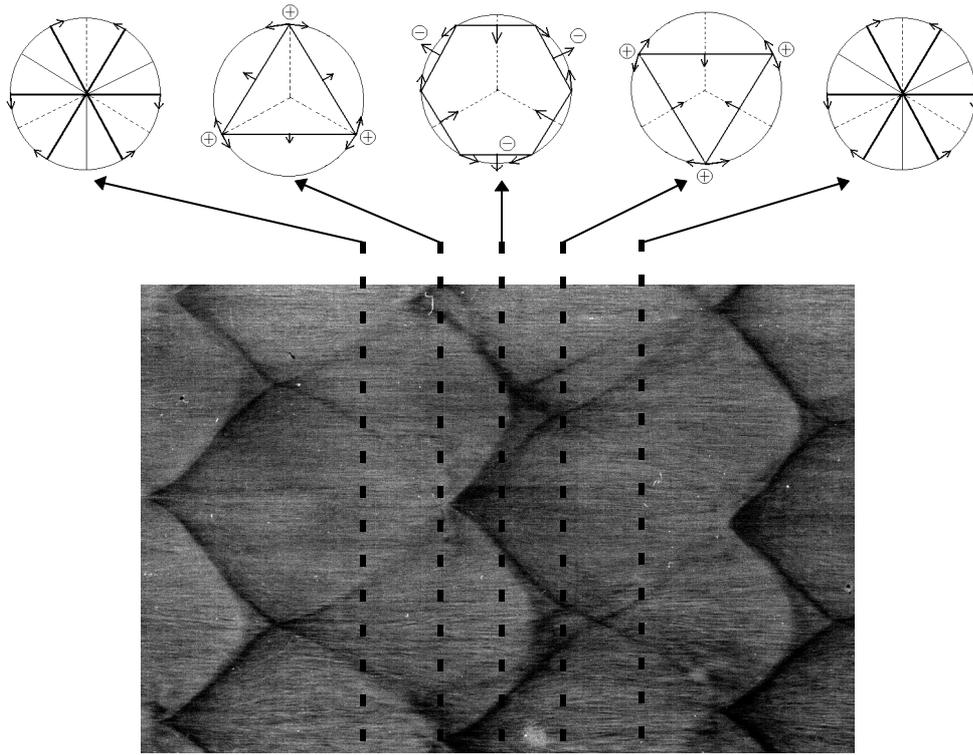


Abbildung 2.17: Rußschrieb einer Detonation in einem runden Rohr und Ansichten der dreidimensionalen Ausbreitung der Transversalstöße, [AP99].

Pantow [Pan97] untersuchte dieses Phänomen ebenfalls anhand von Modellrechnungen und stellte dabei fest, dass Detonationen in $\text{H}_2\text{-O}_2\text{-Ar}$ Luft Gemischen sich selbst im eindimensionalen Fall stabil ausbreiten, wohingegen bei Detonationen in $\text{H}_2\text{-Luft}$ Gemischen mindesten zwei Dimensionen erforderlich sind, d.h. nur die Transversalstöße verhindern eine vollständige Entkopplung des Stoß/Flamme Systems der Detonationsfront. Gamezo et al. [GDO99a] verallgemeinerten anhand numerischer Simulationen diese Theorie, indem sie den sogenannten Aktivierungsparameter der Induktionsphase θ für den Grad der Regularität heranzogen, der den Verstärkungsfaktor von Störungen in chemisch reagierenden Strömungen repräsentiert. Der Aktivierungsparameter ist definiert als

$$\theta = \frac{E_i}{RT_{VN}} = \frac{1}{T_{VN}} \left(\frac{\ln \tau_2 - \ln \tau_1}{\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}} \right), \quad (2.41)$$

und lässt sich, wie in Gleichung (2.41) dargestellt, aus den Induktions-

zeiten τ_1 und τ_2 zweier CV-Simulationen bei unterschiedlichen Temperaturen T_1 und T_2 berechnen. Größere Werte von θ ergeben ein unregelmäßigeres Detonationszellenmuster sowie eine Unterstruktur innerhalb einer Zelle. Vasiliev et al. [VMT87] konnten experimentell und Gamezo et al. [GKO99] numerisch nachweisen, dass eine sogenannte sekundäre Unterstruktur in Detonationszellen ab einem Wert von $\theta > 6.2$ auftritt. Gamezo et al. konnten des weiteren zeigen [GDO99a], dass die Geschwindigkeitschwankungen innerhalb einer Detonationszelle für höhere Aktivierungsenergien stark zunehmen. Bei niedrigen Aktivierungsparametern sind die Transversalwellen sehr schwach und breiten sich ungefähr mit der lokalen Schallgeschwindigkeit aus. Bei hohen Aktivierungsparametern hingegen nimmt die Stoßstärke an den Tripelpunkten und somit auch die Stärke der Transversalwellen stark zu, wodurch die Krümmung der Detonationszellenberandung stark zunimmt. Ebenso ist es denkbar, dass durch die starken Geschwindigkeitsunterschiede innerhalb einer Detonationszelle verbunden mit der starken Temperaturabhängigkeit der Induktionszeit, die stoßinduzierte Zündung des Gemisches in einem gewissen Bereich stochastisch erfolgt, was sich in einer unterschiedlichen Größe der einzelnen Detonationszellen auswirkt. Moen et al. [MST⁺86] zogen deshalb neben dem Aktivierungsparameter die Auswirkung einer Geschwindigkeitsschwankung auf die Veränderung der Induktionszeit zu der Beurteilung der Regularität der Detonationszellen in Betracht, die wie folgt formuliert werden kann:

$$\frac{\Delta\tau_i/\tau_i}{\Delta\text{Ma}_{vN}/\text{Ma}_{vN}} = -2 \frac{2 + (\kappa - 1)\text{Ma}_{vN}^2\theta}{2 + (\kappa - 1)\text{Ma}_{vN}^2}. \quad (2.42)$$

Oran [Ora99] stellte aufgrund von Untersuchungen von Guirguis et al. [GOK86] mit flüssigem Nitromethan fest, dass neben der Induktionszeit auch die Energiefreisetzungszeit τ_r von großer Bedeutung für die Regelmäßigkeit der Detonationszellen ist. Eine langsame Energiefreisetzung trägt dabei stark zur Ausbildung unregelmäßiger Detonationszellen bei.

Ein weiteres sehr geeignetes, jedoch wenig verbreitetes Verfahren um Unregelmäßigkeiten an Detonationsfronten berührungslos aufzuzeichnen [vT99] stellt das optische Messverfahren der Interferometrie (vgl. u.a. [May01]) dar, das von White [Whi61] bei $\text{H}_2\text{-O}_2$ -Gemischen unter Zusatz von CO bzw. Edelgasen eingesetzt wurde. Aus dieser Arbeit kann geschlossen werden, dass die Unregelmäßigkeiten in den Wandrußschrieben den lokalen

Vorgängen an der Detonationsfront entsprechen. Die Regelmäßigkeit der Detonationsstruktur ist gerade deshalb von so großer Bedeutung, da sie u.a. einen erheblichen Einfluss auf die Aufweitung von Detonationsfronten [MST⁺86, JKOS96] aber auch auf den Übergang von der Deflagration in die Detonation (z.B. [KAD99]) hat.

Aufgrund der Irregularitäten der Detonationszellen gestaltet sich die experimentelle Bestimmung einer exakten mittleren Detonationszellweite λ sehr schwierig. Shepherd et al. [SMMT86] entwickelten dazu ein photographisches Verfahren, um aus einem Rußschrieb die mittlere Detonationszellweite zu bestimmen. Die Detonationszellweiten der im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit verwendeten Gemische sind im Anhang graphisch dargestellt. Kaneshige und Shepherd [KS97] entwickelten zudem ein Archiv, in dem umfangreich in der Literatur vorhandene Daten zu Detonationszellweiten für zahlreiche Brennstoff-Luft Gemische zusammengefasst sind.

Trotz der offensichtlich großen Unsicherheit bei den in der Literatur angegebenen Werten von λ hat sich gerade dieser dynamische Detonationsparameter [Lee84] als am besten geeignet gezeigt, um reaktive Gemische hinsichtlich ihrer Detonationsfähigkeit zu klassifizieren. Obwohl λ eine rein gemischabhängige Größe ist, kann sie nicht direkt analytisch berechnet werden. Shchelkin und Troshin [ST65] stellten jedoch einen Zusammenhang zwischen dem statischen Parameter der Reaktionszonenlänge Δ und der Detonationszellweite λ her:

$$\lambda = A\Delta , \tag{2.43}$$

wobei λ nur genau dann direkt proportional zu Δ ist, wenn die Aktivierungsenergie eines Gasgemisches unabhängig vom Brennstoffanteil ist. Shepherd [She86] untersuchte den Einfluss verschiedener Definitionen der Reaktionszonenlänge auf die Genauigkeit der mit der Korrelation (2.43) berechneten Werte. Mit den von Shepherd ermittelten, konzentrationsabhängigen Werten von A konnte die Detonationszellweite mit einer Genauigkeit von ca. 50% ermittelt werden, wobei die Ungenauigkeit bei konstanten Werten von A bei ca. 200% lag. Gavrikov et al. [GED98, GED00] verbesserten dieses Modell, indem sie die dynamische Ausbreitung einer Detonationsfront mit den Geschwindigkeitsschwankungen in den Detonationszellen berücksichtigten.

2.3.3 Arten und Grenzen der Detonationsausbreitung in geschlossenen Behältern

Breitet sich eine Detonationsfront in einem Rohr nach dem in vorangegangenen Kapitel diskutierten Mechanismen aus, so spricht man von einer gewöhnlichen Detonation. Aufgrund geometrischer Einflüsse der Behälterwände sowie von Hindernissen lassen sich mehrere Arten der oben beschriebenen Detonationsausbreitung beobachten.

Von besonderer Bedeutung sind dabei Detonationen, die sich in einer gegebenen Geometrie aufgrund ihrer Gemischzusammensetzung gerade noch ausbreiten können (Englisch: *Marginal-Detonations*). Die charakteristische Zellgröße einer Marginal-Detonation kann dabei größer sein als sie für ein identisches Brennstoff-Luft Gemisch bei einer gewöhnlichen Detonation beobachtet wird. Strehlow und Crooker [SC74] beobachteten z.B. in mit Argon verdünnten H_2 - O_2 Gemischen eine Vergrößerung der Detonationszellenbreite um einen Faktor von bis zu 2.29^3 , d.h. wenn die Größe der Detonationszellen im Größenbereich des Versuchsbehälters liegt, passt sich die Detonation an die geometrischen Verhältnisse an. Der Grund für diese Veränderung und ebenso für die von Fickett und Davis [FD79] beobachtete Zunahme der Regularität bei Marginaldetonationen liegt darin, dass sich ein Resonanz-Zustand zwischen den charakteristischen Instabilitäten einer Detonation und den akustischen Moden des Versuchsbehälters einstellt [SMMT86]. Die charakteristischen Merkmale von Marginal-Detonationen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Je marginaler die Detonation ist, umso stärker ist die Struktur, d.h. die Stärke der Transversalstöße nimmt erheblich zu.
- Die Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Marginal-Detonation liegt nur geringfügig unter der theoretischen CJ-Detonationsgeschwindigkeit.
- Die Abweichung der Stoßgeschwindigkeit über der Detonationszellenlänge von der mittleren Ausbreitungsgeschwindigkeit der Detonation ist bei Marginal-Detonationen größer (ca. 20% [LWO95]) als im Fall einer gewöhnlichen Detonation.

³Die für die Abschätzung der Detonationsgrenzen verwendeten Größen beziehen sich stets auf die in gewöhnlichen Detonationen ermittelten Detonationszellengrößen.

Die konservativen Detonationsgrenzen bzgl. der Detonationszellweiten sind nach wie vor Gegenstand der Diskussionen in der Literatur. Dies liegt zum einen in der unterschiedlichen Interpretation der gemessenen Zellweiten und zum anderen an den unterschiedlichen geometrischen Verhältnissen der Versuchsbehälter, in denen Versuche zu Marginal-Detonationen durchgeführt wurden. Für einen rechteckigen Kanal der Höhe H und der Breite B mit $B > H$ gilt nach [BCD⁺00], dass mindestens eine Detonationszelle in den Kanal passen muss: $B > \lambda$, d.h. es existieren zwei Transversalstoßwellen. Wetzel [Wet93] und Guirguis et al. [GOK86] hingegen geben an, dass eine halbe Detonationszelle (entsprechend einer Transversalwelle) für die Detonationsausbreitung ausreicht, wobei davon ausgegangen wird, dass die Behälterwände die Transversalwelle ideal reflektieren.

Begrenzt ein kreisrundes Rohr das Brennstoff-Luft Gemisch, so ist der detonationsfähige Gemischbereich deutlich größer als im Falle eines rechteckigen Kanals. Eine Marginal-Detonation kann sich in diesem Fall nicht nur planar, sondern auch spiralförmig als sogenannte *Spindetonation* aus. Auf Rußschrieben hinterlassen sie lediglich eine spiralförmige Spur, die in ihrer einfachsten Form der Trajektorie des einzigen Tripelpunktes aus dem Hauptstoß, einem um die Rohrachse rotierenden Transversalstoß und dem Machstamm besteht. Diese Konfiguration zeichnet sich insbesondere dadurch aus, dass der Transversalstoß nie mit einem anderen Stoß kollidiert. Dieses System weist daher die stärksten Transversalstöße auf, um dennoch das Brennstoff-Luft Gemisch zu zünden. Die umfangreichsten Untersuchungen zu Spindetonationen wurden von Voytsekhovskiy et al. [VMT69] sowie von Schott [Sch65] durchgeführt. Für eine ausführliche zusammenfassende Darstellung der lokalen Stoßstruktur einer Spindetonation sei auf Fickett und Davis [FD79] und auf Huang et al. [HLvT00] verwiesen. Die Grenzen für diese Art der Detonationsausbreitung wurden von Kogarko und Zel'dovich [KZ48] mit $D = \lambda/\pi$ (*“einköpfige Spindetonation”*) angegeben. Obwohl diese Theorie von Shchelkin [Shc59] und in der Folge von Moen et al. [MDKL81] nicht bestätigt werden konnte, wiesen Dupre et al. [DKL86] in einem Experiment, bei dem einzelne Rohrabschnitte eines Explosionsrohres zunehmend kleiner wurden, für Wasserstoff-Luft Gemische die Gültigkeit des Kriteriums von Zel'dovich nach.

Gerade bei Marginal-Detonation besteht die Möglichkeit, dass bereits ei-

ne geringe Störung an der Detonationsfront die Flamme vom Stoßsystem entkoppelt. Kommt es dabei zu einer zyklischen Ent- und Wiederkopplung des Stoß/Flamme-Systems, so spricht man von einer *galoppierenden Detonation*. Instabile Detonationen dieser Art wurden von Dupré et al. [Dup90] für verschiedene Brennstoffe in einer erweiterten Versuchsanlage zur Bestätigung des $D = \lambda/\pi$ -Kriteriums (siehe oben) für Gemische mit der Eigenschaft $\lambda/d > 1$ beobachtet. Die einzelnen Zyklen erstrecken sich über mehrere Meter [GFN91], so dass diese Art der Detonationsausbreitung nur in sehr langen Explosionsrohren beobachtet werden kann. Während eines Zyklus variiert die Ausbreitungsgeschwindigkeit um mehr als 100% des Wertes der CJ-Detonationsgeschwindigkeit, wobei der Mittelwert ungefähr der CJ-Detonationsgeschwindigkeit entspricht. Die Ursache für das zyklische Verhalten war Gegenstand zahlreicher numerischer Untersuchung (u.a. [Cla97, Kle95]). Brouillette et al. [BHD99] fanden in ihren numerischen Studien heraus, dass die Verlangsamung der Detonationsfront nach der Entkopplung zu einer starken Beschleunigung der Flammenfront führt und wieder eine Kopplung zwischen Stoßwelle und Flamme erfolgt.

Ist, wie im Fall der galoppierenden Detonation, die Detonationsgeschwindigkeit partiell größer als ihr entsprechender CJ-Wert, so spricht man von einer *überkomprimierten Detonation*. Durch die höhere Ausbreitungsgeschwindigkeit nimmt die Induktionszeit des Gemisches hinter dem Hauptstoß sowie dem Machstamm ab und die Detonationszellen werden kleiner [ZWB87]. Da der Zustand der überkomprimierten Detonation im Rankine-Hugoniot Diagramm über dem CJ-Punkt liegt, strömt das verbrannte Gas relativ zur Detonationsfront mit Unterschall ab, wodurch Störungen leicht in die Detonationsfront vordringen können. Daher ist dieser Ausbreitungszustand instabil und die Ausbreitungsgeschwindigkeit fällt auf den stabilen CJ-Wert ab.

Breitet sich eine Detonation in einem mit periodischen Hindernissen bestückten Rohrabschnitt aus, so liegt die Ausbreitungsgeschwindigkeit deutlich (um bis zu 50% [LKC84, KLST98]) unter der CJ-Ausbreitungsgeschwindigkeit. In diesem Fall spricht man von einer sogenannten *Quasidetonation*. Studien von Teodorczyk et al. [TLK90, TLK88] sowie von Chan und Greig [CG88] haben gezeigt, dass dem Ausbreitungsmechanismus von Quasidetonationen ein kontinuierlicher

Selbstzündprozess durch die Wechselwirkung von Stoßwellen mit den Hindernissen zugrunde liegt. Die Wechselwirkungen sind im einzelnen die normalen Stoßreflektionen an dem Hindernis, aber auch Machreflektionen durch die Stoßaufweitung nach den Hindernissen oder querlaufende Transversalstoßwellen. Diese Stoßreflektionen führen punktuell zu sehr hohen Temperaturen (“hot spots”), an denen die Detonation ausgelöst wird. Die unmittelbare Aufweitung der Detonationsfront nach dem Durchtritt durch eine Blende führt dazu, dass sich die Flamme von der Stoßwelle entkoppelt, auf das nächste Hindernis trifft und die daraus entstandenen Explosionskeime erneut zu einer detonativen Flammenausbreitung führen. Die teilweise sehr niedrigen Detonationsgeschwindigkeiten in diesem Regime lassen sich durch die hohen Reibungsverluste infolge der Hindernisse erklären [BCD⁺00]. Brehm [Bre87] interpretierte die Quasidetonation als eine Überschallflamme entsprechend einer CJ-Detonation unter Reibungseinfluss. Brehm, wie auch in der Folge Gu et al. [GKL88] und Eichert [Eic89] führten die Geschwindigkeitsverluste auf eine unvollständige Verbrennung zurück, d.h. die im Frischgas gespeicherte Energie kann aufgrund von Reibungsverlusten nicht bis zum Erreichen des CJ-Zustands vollständig umgesetzt werden. Kriterien für das Auftreten einer Quasidetonation lassen sich lediglich empirisch in Abhängigkeit der Gemischsensitivität (ausgedrückt durch die Zellweite λ) sowie der geometrischen Verhältnisse in der Hindernisstrecke angeben. Im Falle von kreisrunden Hindernisblenden, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wurden, wird als notwendige Voraussetzung für das Auftreten von Quasidetonationen angenommen, dass der Innendurchmesser einer Blende d mindestens so groß ist, wie eine Detonationszellweite λ des beobachteten Frischgasgemisches [KLPC86, GKL88]:

$$\frac{d}{\lambda} > 1 . \quad (2.44)$$

Ein weiterer einflussreicher Parameter ist der Abstand l_{SP} zwischen den einzelnen Hindernissen. Erreicht dieser einen kritischen (minimalen) Wert, so sind für die Aufrechterhaltung einer Quasidetonation größere Blendenöffnungen d erforderlich [GKL88]. Kuznetsov et al. [KAD99] entwickelten dazu eine empirische Formel, die neben dem Abstand der Hindernisse auch die Regelmäßigkeit der Detonationszellen berücksichtigt. Demnach

gilt auf Grundlage des charakteristischen Durchmessers D^*

$$D^* = \frac{l_{SP} + D}{2(1 - \frac{d}{D})} \quad (2.45)$$

für Gemische mit einer unregelmäßigen Zellstruktur (z.B. Wasserstoff- bzw. Kohlenwasserstoff-Luft Gemische)

$$D^* > 7\lambda, \quad (2.46)$$

wohingegen eine Quasidetonation in einem mit Edelgas verdünnten Wasserstoff-Sauerstoff Gemisch erst ab

$$D^* > 40\lambda \quad (2.47)$$

auftritt. Sind die gemischspezifischen sowie die geometrischen Verhältnisse so, dass $d > 13\lambda$ gilt, dann ist die Detonationsausbreitung bei nicht zu geringem Hindernisabstand von der Blockierung unabhängig [LKC84], d.h., die Quasidetonation breitet sich in der Hindernisstrecke mit der CJ-Detonationsgeschwindigkeit aus. Dieses Verhältnis entspricht auch dem Wert, bei dem eine Detonation aus einem unblockierten Rohr stabil in eine sphärisch sich ausbreitende Detonationsfront übergehen kann [Sch00].

2.4 Übergang von der Deflagration zur Detonation (DDT)

2.4.1 Übergangsmechanismen

Der Übergang eines deflagrativen Verbrennungsmechanismus in einen detonativen ist gleichbedeutend mit einem schlagartigen Übergang von einem großenteils diffusiven und turbulenten Flammenausbreitungsmechanismus in einen stoßinduzierten, in dem diffusive Einflüsse aufgrund ihrer vergleichsweise geringen Geschwindigkeit eine untergeordnete Rolle spielen. Folglich erfordert ein DDT-Prozess die Generierung einer sehr starken Stoßwelle, hinter der die Selbstzündtemperatur eines reaktiven Gasgemisches deutlich überschritten wird. Die Stoßwellen, welche bei einer schallnahen

Deflagration erzeugt werden, sind dabei bei weitem zu schwach, um eine direkte Zündung auszulösen. Die Mechanismen, welche eine anfangs deflagrativ brennende Flamme in eine Detonation überschlagen lassen, können von verschiedener Art in Bezug auf ihren Ablauf sein. Die Mechanismen unterscheiden sich in ihrer Entstehung grundlegend voneinander. In der modernen DDT-Forschung werden dabei die Übergangsmechanismen in zwei Kategorien eingeteilt [BCD⁺00]:

- A) Die Detonationsauslösung durch Fokussierung einer, infolge der turbulenten Flammenbeschleunigung entstandenen Stoßwelle, bzw.
- B) durch Vorgänge, die direkt von der Flammenfront beeinflusst werden.

Die Detonationsauslösung durch Fokussierung einer Stoßwelle stellt dabei das weitaus am besten verstandene Phänomen in der DDT-Forschung dar (u.a. [CLTP90, Cha95]) und kann mit den derzeit verfügbaren numerischen Werkzeugen hinreichend genau simuliert werden (vgl. u.a. [BCG⁺99]). Die für die direkte Detonationsauslösung zu schwache, einfallende Stoßwelle wird an zwei- und dreidimensionalen Reflektoren (entsprechend einer Ecke oder einer konkaven Wand) auf einen Punkt fokussiert, an dem die Selbstzündtemperatur des Gases weit überschritten wird. Die eingeleitete unmittelbare Energiefreisetzung hinter der reflektierten Stoßwelle kann dazu führen, dass die Stoßwelle dabei insoweit verstärkt wird, dass sich eine Detonationsfront ausbildet. Die Detonationsinitiierung durch Stoßreflexionen ist des weiteren, wie oben dargestellt, ein wichtiger Bestandteil bei der Ausbreitung von Quasidetonationen.

Die zweite Kategorie der DDT-Mechanismen ist deutlich komplexer, da eine Vielzahl von Instabilitäten und turbulenten Mischprozessen daran beteiligt ist. Detonationsübergänge dieser Art können in verschiedene Subkategorien unterteilt werden. Eine sinnvolle Unterteilung ist dabei, in Mechanismen zu unterscheiden, bei welchen aufgrund des deflagrativen Verbrennungsprozesses bereits eine starke Stoßwelle gebildet wurde bzw. eine Detonationsauslösung ohne eine anfangs vorhandene Stoßwelle erfolgt. Der letztere Fall tritt ein, wenn ein hochturbulenter Flammenfreistrahler oder auch ein Freistrahler von heißem Abgas in einen mit reaktionsfähigem Gasgemisch gefüllten Raum eindringt.

Turbulente Freistrahlen treten im allgemeinen nach einzelnen Hindernissen mit hoher Blockierrate auf. Durch den Verbrennungsprozess vor dem Hindernis baut sich ein großer Druckgradient über dem Hindernis auf. Die dadurch initiierte Strömung bildet mit dem ruhenden Gemisch hinter der Blende hochturbulente Scherschichten aus, wodurch die Flamme bei dem Durchtritt durch das Hindernis gelöscht wird. Dabei werden hochreaktive, heiße Verbrennungsradikale mit dem unverbrannten Frischgas vermischt. Kommt es zu einer simultanen Energiefreisetzung dieser hochreaktiven Gemischvolumina, werden starke Stoßwellen generiert, die sich als Detonationsfront weiter ausbreiten können. Dieser Effekt wurde erstmals von Knystautas et al. [KLMW78] beobachtet. Obwohl detaillierte Studien folgten (u.a. [MBEJ89, PS99]), konnten für dieses Phänomen keine zufriedenstellenden Kriterien (vgl. z.B. [BCD⁺00]) in Abhängigkeit der Blendenöffnung sowie der Dimension des Freistrahls gefunden werden. Chan et al. [CLR90] konnten in einem idealisierten Experiment nachweisen, dass durch hohe Turbulenz gelöschte Flammen Auslöser für einen DDT-Prozess sein können.

Der Übergang von der Deflagration in die Detonation infolge einer turbulenten Flammenbeschleunigung sowie der Wechselwirkung zwischen Flamme und vorauslaufender Stoßwelle ist das am längsten untersuchte und zugleich auch das komplexeste aller DDT-Phänomene. Bereits Urtiev und Oppenheim [UO66] konnten anhand von schlierenoptischen Messungen vier verschiedene Übergangsmechanismen einer beschleunigten Flamme in die Detonation beobachten. Dabei bildete sich an der turbulenten Flamme selbst, direkt an der Stoßfront, zwischen Stoß- und Flammenfront oder auch an einer Kontaktdiskontinuität, an der zwei Stoßwellen aufeinander laufen, eine Detonationsfront aus. Eine der weitest reichenden Erkenntnisse dieser Versuche war, dass bei diesen beobachteten Übergängen die Detonation stets durch eine lokale Explosion eines, in einen entsprechenden thermodynamischen Zustand versetztes Gemischvolumen ausgelöst wurde. Diese hochreaktiven Gemischvolumina können sich nach Lee und Moen [LM80] durch eine intensive Vermischung von verbranntem und unverbranntem Gas in einer turbulenten Scherschicht ausbilden.

In Behältern mit einer sehr glatten Rohrwand treten diese Scherschichten nur in der Wandgrenzschicht auf (siehe [Sch79]), weshalb in diesem Fall

vergleichsweise lange Anlaufängen erforderlich sind, um eine Detonation auszulösen. Ist dieser Punkt über eine kritische Flammenausbreitungsgeschwindigkeit erreicht, so erfolgt in einem glattwandigen Rohr ein abrupter Sprung in dem Geschwindigkeitsverlauf über der Rohrlänge. Die entstandene Detonationsfront unmittelbar nach dem erfolgten DDT-Prozess ist deutlich überkomprimiert und fällt kontinuierlich auf den entsprechenden CJ-Wert ab [SL92]. Im überkomprimierten Zustand ist die Detonationsfront zunächst eben, durch die in Abschnitt 2.3.2 beschriebenen Instabilitäten nimmt sie zunehmend eine zellulare Form an. Infolge der starken Überkompression sind die Detonationszellen anfangs unabhängig von der Gemischzusammensetzung sehr regelmäßig, die Transversalwellen bewegen sich annähernd mit einfacher Schallgeschwindigkeit. Erst mit Annäherung an den CJ-Zustand entwickeln anschließend die oben beschriebenen Unregelmäßigkeiten eine zellulare Struktur [GDO99b, GDO99a]. Wird in Rohren eine künstliche Rauigkeit erzeugt (z.B. durch eine Shchelkin-Spirale [Shc56] oder durch periodische Hindernisse), verkürzt sich die Rohrlänge bis zum Eintritt des DDT erheblich. In diesem Fall besteht die Möglichkeit, dass die Flamme kontinuierlich durch Turbulenz und Einflüsse der Stoßfront bis zur CJ-Detonationsgeschwindigkeit beschleunigt, wodurch eine isolierte Betrachtung des DDT Prozesses in Frage gestellt sei [SL92].

Die bei nahezu allen DDT-Prozessen zugrundegelegte Generierung einer Stoßwelle reicht jedoch zu der Erklärung des DDT nicht aus, da eine, durch einen Verbrennungsprozess generierte Stoßwelle keine ausreichend großen Temperaturen zur Selbstzündung eines Brennstoff-Luft Gemisches erzeugt. Die Bildung einer Detonationsfront erfordert zusätzlich die Verstärkung der generierten Stoßwellen. Dieser Vorgang wurde von Lee et al. [LKY78] aufgrund von Untersuchungen zur photochemischen Detonationszündung beobachtet und als sogenannter SWACER⁴ Mechanismus auf allgemeine DDT-Phänomene übertragen. Der SWACER Mechanismus lässt sich so interpretieren, dass sich eine, durch eine lokale Explosion generierte Stoßwelle, in ein Frischgasgemisch ausbreitet, das bereits durch eine vorauslaufende Stoßwelle in einen höheren thermodynamischen Zustand versetzt wurde [LM80]. Aufgrund eines dadurch räumlich vorhandenen Gradienten der Induktionszeiten um den Ort der lokalen Explosionsauslösung wird der Stoßwelle aus der Explosion bei ihrer Ausbreitung kontinuierlich Energie

⁴SWACER= Shock Wave Amplification by Coherent Energy Release.

durch die dahinter einsetzende Wärmefreisetzung zugeführt, so dass ihre Stärke stetig zunimmt. Dies erfordert jedoch, dass die Energiefreisetzung “in Phase” mit der Ausbreitung der Explosionswelle erfolgt, d.h., erfolgt die Energiefreisetzung zum Zeitpunkt t_1 , an dem die zum Zeitpunkt t_0 generierte Druckwelle den zu t_1 entsprechenden Ort der Energiefreisetzung erreicht, so wird die Druckwelle kontinuierlich verstärkt, bis die Stärke einer Detonationsfront erreicht ist.

Der SWACER Mechanismus konnte auch in zahlreichen numerischen Studien nachgewiesen werden (u.a. [KOW97, Cla89]). Eine wichtige Erkenntnis dieser numerischen Studien war, dass die Größe des sensitiven, vorkonditionierten Gemischbereichs minimal dem zehnfachen Wert der dem ungestörten Gemisch korrespondierenden Detonationszellweite entspricht. Dies bedeutet, dass je größer die Detonationszellweite eines Brennstoff-Luft Gemisches ist, um so länger dauert der Prozeß des Übergangs von der Deflagration in die Detonation.

2.4.2 Kriterien für den DDT durch Flammenbeschleunigung

Gerade im Rahmen der Sicherheitsforschung ist die Frage relevant, ob und wann ein reaktionsfähiges Gemisch von einer Deflagration in eine Detonation übergeht. Als generelles Kriterium gilt, dass die geometrischen Grenzen anhand der gemischabhängigen Detonationszellweite für den DDT-Prozess gleich der in Abschnitt 2.3.3 dargestellten Detonationskriterien (λ -Kriterium) sein müssen [Lee86]. Jedoch wurden teilweise Abweichungen von diesen Grenzen beobachtet. So konnten beispielsweise Knystautas et al. [KLPC86] einen DDT-Prozess nur für Gemischzusammensetzungen, die der Bedingung $\lambda/D \leq 1$ entsprechen, beobachten.

Ab welcher kritischer Flammengeschwindigkeit ein DDT-Prozess eintreten kann, wurde von Chan et al. [CDK96] sowie von Peraldi et al. [PKL86] experimentell in Explosionsrohren unterschiedlichen Durchmessers, die über die gesamte Rohrlänge mit periodischen Hindernissen bestückt waren, untersucht. Peraldi et al. zeigten, dass die Flammen auf eine Geschwindigkeit nahe der isobaren Schallgeschwindigkeit beschleunigt werden müssen, um geeignete Voraussetzungen für einen DDT Prozess zu erreichen. Chan et al. gaben als Kriterium an, dass die Flammengeschwindigkeit mindestens

auf den 1.5-fachen Wert der Schallgeschwindigkeit des reaktiven Gemisches vor seiner Zündung beschleunigt werden muss. Dieses Kriterium weist einen deutlichen Unterschied zu dem von Peraldi et al. auf. He zeigt in [BCG⁺99] darüber hinaus anhand einer analytischen Dimensionsbetrachtung ohne experimentelle Bestätigung auf, dass für einen DDT-Prozess die deflagrative Flamme im Bereich der Linie $Da = 1$ (siehe Phasendiagramm von Abbildung 2.4, Seite 16) liegen muß.

Ob eine Flamme auf diese Ausbreitungsgeschwindigkeiten beschleunigt werden kann, hängt von vielen strömungsmechanischen und chemischen Faktoren ab. Dorofeev et al. [BCD⁺00, DKA⁺99] gaben ein empirisches Kriterium an, das lediglich auf chemischen Größen basiert. Das sogenannte σ -Kriterium besagt, dass eine für den Detonationsübergang nötige Flammenbeschleunigung nur eintreten kann, wenn das Verhältnis der Dichten von unerbrannten und unverbrannten Gemisch (Expansionsverhältnis σ) in Abhängigkeit der Zel'dovich Zahl β und der Lewis Zahl Le einen kritischen Wert übersteigt:

$$\sigma = \frac{\rho_u}{\rho_b} > \sigma^*(\beta, Le) . \quad (2.48)$$

Eine Beschleunigung der Flamme in das Regime der schallnahen Deflagration bzw. der Detonation kann lt. Dorofeev et al. nur eintreten, wenn folgende Bedingung erfüllt ist:

$$\begin{aligned} \sigma &> 3.75 \pm 0.25, \text{ f. Gemische mit } \beta(Le - 1) > -2, \text{ bzw.} \\ \sigma &> a\beta^3 + b\beta^2 + c\beta + d, \text{ f. Gemische mit } \beta(Le - 1) < -2, \end{aligned} \quad (2.49)$$

wobei für $a = 0.0434$, $b = -0.3826$, $c = 1.1161$ und $d = 0.9697$ gilt⁵.

Die Zel'dovich Zahl β ist definiert als

$$\beta = \frac{E(T_b - T_u)}{RT_b^2} \quad (2.50)$$

und ist ein Indikator dafür, wie sich thermodynamische Störungen auf die Reaktionszone auswirken. Eine große Zel'dovich Zahl bedeutet beispielsweise, dass die Reaktionszeit bei einer gegebenen Temperaturänderung

⁵Die in (2.49) angegebene Ungleichung für $\beta(Le - 1) < -2$ ist nicht Bestandteil von [BCD⁺00, DKA⁺99], sondern wurden aus den dort angegebenen Graphen approximiert.

stärker variiert, d.h., die Stabilität des fluiddynamischen und chemischen Gleichgewichts nimmt ab. Dieser Faktor lässt sich sowohl auf Detonationen als auch auf deflagrative Flammen anwenden. Das Produkt $\beta(L_e - 1)$ beschreibt die Ausprägung zellulärer Instabilitäten in Flammen [Cla85], wobei – wie in Abschnitt 2.2 dargelegt – instabile Flammen deutlich schneller beschleunigen.

Brehm [Bre87] entwickelte anhand von Stabilitätskriterien ein Modell, in dem sich reaktive Gemische anhand ihrem DDT-Potential klassifizieren lassen. Dieses Modell lässt sich jedoch nur auf große Geometrien anwenden, um einen DDT auszuschließen, da in typischen Versuchsanlagen das λ -Kriterium eine konservativere Grenze darstellt.

3 Beschreibung der Versuchsanlage und Versuchsmatrix

Die experimentellen Untersuchungen wurden in einem beidseitig geschlossenem Explosionsrohr mit rundem Querschnitt (\varnothing 66 mm) durchgeführt, das auch im Rahmen der Untersuchungen von Brehm [Bre87] und Beauvais [Bea94] eingesetzt wurde. Die Messtrecke besteht aus vier Segmenten mit einer Länge von jeweils 1.5 m, sowie aus einem optisch zugänglichen Segment mit einer Länge von 0.5 m, das jeweils zwischen den Segmenten angebracht werden kann, siehe Abbildung 3.1. Da das von Beauvais eingesetzte optische Segment lediglich für LDA-Messungen konzipiert war und somit einen zu geringen Einsichtbereich aufwies, wurde dieses neu gestaltet, um eine zweidimensionale und auch zeitaufgelöste Visualisierung der hochtransienten Vorgänge im Explosionsrohr zu ermöglichen. Aus diesem Grund wurde im Rahmen dieser Arbeit ein optisches Segment mit seitlichen Fenstern der Dimension 300×50 mm verwendet, das auch an der Ober- und Unterseite schmale Fenster für den Einsatz der “Planaren Laserinduzierten Prädissoziations-Fluoreszenz” (PLIPF) Messtechnik (siehe Abschnitt 4.2.2) besitzt. Alle Fenster bestehen aus Quarzglas (Qualität SQ1), um möglichst gute Transmissionseigenschaften im ultravioletten Wellenlängenbereich für das PLIPF-Verfahren zu gewährleisten. Die optisch zugängliche Sektion weicht im Fensterbereich von der Idealform des runden Rohres ab, da das Rohr an den Fenstereinsätzen Rücksprünge aufweist. Die Verwendung einer runden optisch zugänglichen Sektion war aus Gründen der Optik der eingesetzten Messverfahren nicht realisierbar. Ein Einfluss der Rücksprünge auf den Verbrennungsablauf konnte nur bei der Entstehung der einköpfigen Spindetonation beobachtet werden, bei welcher eine runde Rohrgeometrie zwingend erforderlich ist, siehe Kapitel 2.3.3. Die einzelnen Rohrsegmente bestehen aus Edelstahl mit einer Wandstärke von 11 mm. Daraus ergibt sich ein Auslegungsdruck von ca. 200 bar.

Das Explosionsrohr ist von einem schalenförmigen Hohlraum umgeben, der mit Wärmeträgeröl gefüllt ist. Das Öl aller vier Segmente ist über ein Rohrleitungssystem mit einem Thermostat verbunden, der das Öl umwälzt. Zusätzlich kann die Außenseite jedes Rohrsegmentes, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, mit je 10 m langen, regelbaren Heizleitern (Leistungsdichte:

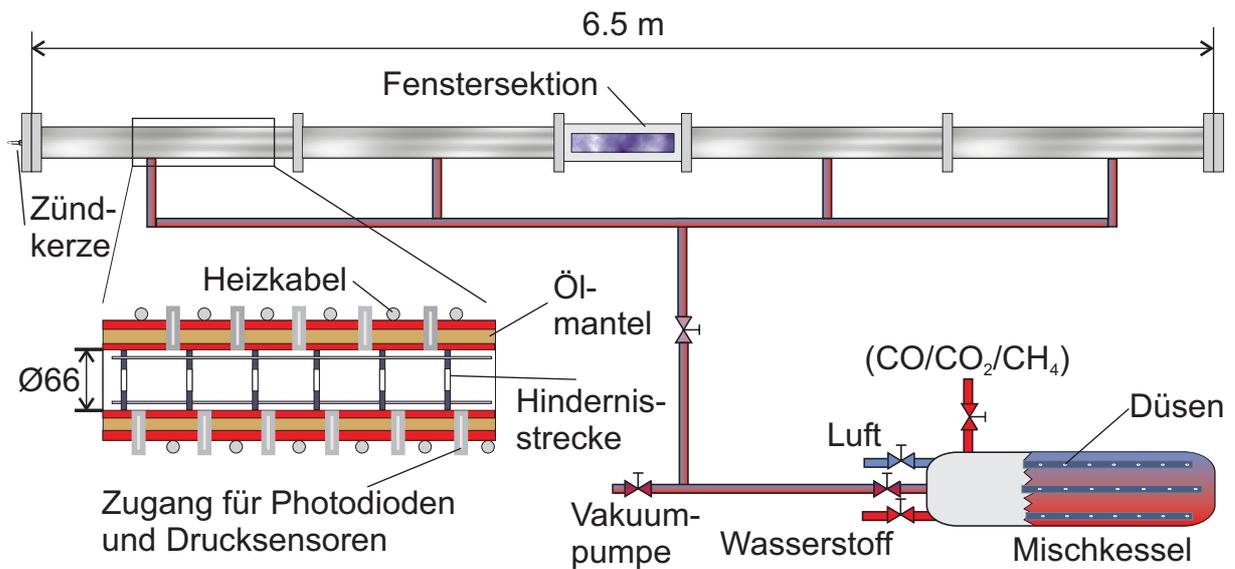


Abbildung 3.1: Gesamtansicht der Versuchsanlage samt Befüllung.

200 W/m) auf eine konstante Wandtemperatur erhitzt werden. Mit diesem Heizsystem konnte das innere Rohr im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Versuche auf ca. 120°C erhitzt werden. Für Versuche unter erhöhter Anfangstemperatur wurden die Fenster der optischen Sektion durch Stahlblöcke ersetzt und ebenfalls von außen beheizt, um zu gewährleisten, dass alle dem reaktiven Gemisch ausgesetzten und nicht direkt beheizbaren Flächen eine Temperatur von über 100°C aufweisen. Die Zündung des Gemisches erfolgt durch einen einzelnen Zündfunken an einem der Flansche durch eine zentrisch montierte Zündkerze, die von einer Zündspule angesteuert wird. Das Rohr verfügt zudem über wechselseitig angebrachte Durchführungen im Abstand von 20 cm für Messaufnehmer.

Die periodische Hindernisstrecke zur Flammenbeschleunigung besteht aus Blenden der Blockierrate $BR = 30, 60$ und 90% . Neben der Blockierrate wurden sowohl der Abstand der einzelnen Hindernisse l_{SP} als auch die gesamte Länge der Hindernisstrecke L_{OP} variiert, um den Einfluss verschiedener Flammengeschwindigkeiten für den Übergang von der Deflagration in die Detonation zu untersuchen. Die Hindernisse sind an drei Gewindestangen angeschraubt, die wiederum an dem Zündflansch gegen ein Verrutschen in der Anlage gesichert sind, siehe Abbildung 3.2.

Um Versuche zu einem definierten Anfangszustand mit einem hohen Grad

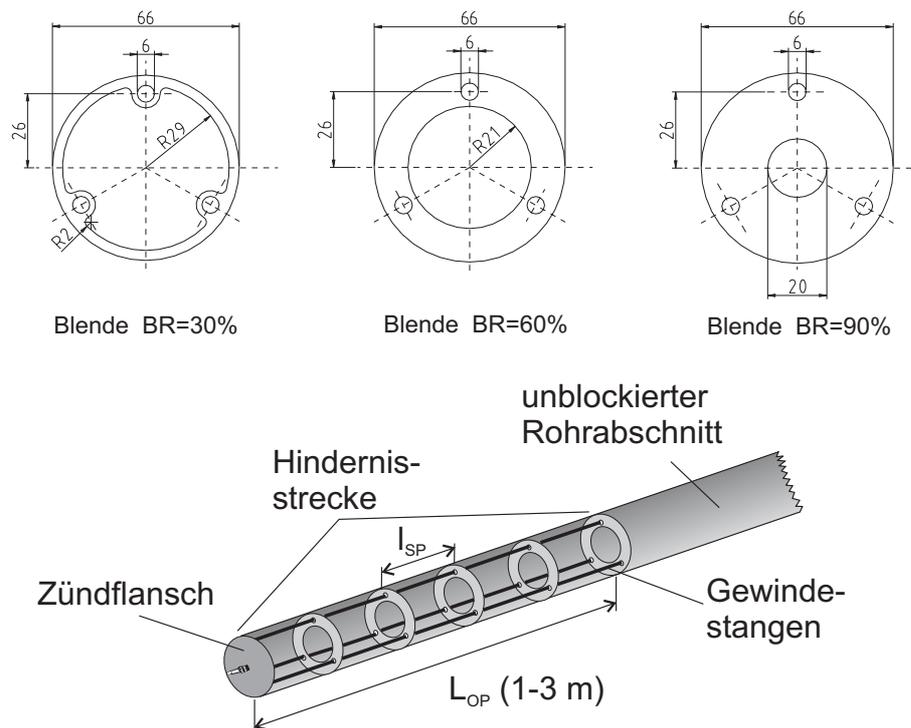


Abbildung 3.2: Geometrie der eingesetzten Blenden sowie Anordnung der Hindernisse im Explosionsrohr.

an Reproduzierbarkeit durchführen zu können, ist die genaue Befüllung der Versuchsanlage bezüglich der Brennstoffkonzentration unerlässlich. Insbesondere bei mageren Gemischen nahe der Detonationsgrenze wirken sich kleine Konzentrationsunterschiede von Versuch zu Versuch, ebenso wie Inhomogenitäten in der Mischung, stark aus. Aus diesem Grund wurde eine Befüllereinrichtung entwickelt, die die exakte Einhaltung der Gemischkonzentrationen gewährleistet. Das Mischungsverhältnis der Reaktionspartner wird über deren Partialdruck in einer externen Mischkammer eingestellt. Vor jedem Versuch wurde die gesamte Anlage mit Druckluft gespült um die bei dem Verbrennungsprozess entstandenen Abgase auszuspülen. Nachdem die gesamte Versuchsanlage samt Mischkessel evakuiert ist (Restdruck ca. 50 mbar), wird die Mischkammer mit den berechneten Partialdrücken der entsprechenden Gase nacheinander befüllt. Die Gase strömen in die Mischkammer über ein mit mehreren Düsen versehenes Rohr ein. Die Düsen ermöglichen eine intensive Mischung der Komponenten. Anschließend wird das homogenisierte Gemisch zu dem evakuierten Explosionsrohr

geleitet und dort über 20 Düsen⁶, die über der Messstrecke verteilt sind, eingeblasen. Das Einströmen über verteilte Düsen verhindert zusätzlich Inhomogenitäten in der Brennkammer. Die darauf folgende Wartezeit von ca. 2 Minuten vor dem Versuch dient dem Abklingen der Strömungen im Rohr. Die Befüllung wurde mit einem Konzentrationsmessgerät im Bereich von 0 bis 4 vol % H₂ (untere Zündgrenze) an mehreren Stellen entlang der Messstrecke sowie für höhere Konzentrationen exemplarisch mit Hilfe der Gaschromatographie überprüft. Mit dieser Art der Gemischaufbereitung konnten neben den reinen Wasserstoff-Luft Gemischen auch Dreistoffgemische unter Beimengung von CO, CO₂, CH₄ und H₂O sowie unter variablen thermodynamischen Initialzustand untersucht werden. Bei der Untersuchung von H₂-H₂O-Luft Gemischen wurde eine definierte Menge an Wasser an zwei Stellen direkt in das aufgeheizte und auf 100 mbar evakuierte Rohr eingespritzt und der Volumenanteil über die jeweiligen Partialdrücke im Rohr bestimmt. Anschließend wurde das kalte, vorgemischte Brennstoff-Luft Gemisch langsam in das Rohr übergeleitet und im Rohr selbst erhitzt.

Das Hauptziel dieser Arbeit bestand in der Untersuchung von Wasserstoff-Luft Gemischen unter Umgebungsdruck und -temperatur. Das Brennverhalten dieses Gemisches wurde für 13 Hinderniskonfigurationen zur Flammenbeschleunigung untersucht, wobei für drei Konfigurationen auch der überstöchiometrischen Gemischbereich miteinbezogen wurde. Die Abstände sowie die Blockieraten der Hindernisse wurden dabei basierend auf den Ergebnissen von Beauvais et al. [BMS94] (siehe Abbildung 2.8, Seite 26) so gewählt, dass sich ein Spektrum an verschiedenen maximalen Flammengeschwindigkeiten in der Hindernisstrecke einstellt. Für eine Hinderniskonfiguration wurde bei reinen Wasserstoff-Luft Gemischen zusätzlich der thermodynamische Anfangszustand des Wasserstoff-Luft Gemisches in Form eines erhöhten Anfangsdruckes sowie einer erhöhten Anfangstemperatur variiert.

Neben den reinen Wasserstoff-Luft Gemischen wurde der Einfluss von Inhibitoren wie Wasserdampf und Kohlendioxid, sowie der von kohlenstoffhaltigen Brennstoffen (Methan und Kohlenmonoxid) auf den Wasserstoff-

⁶Aus Gründen der Übersichtlichkeit ist in Abbildung 3.1 nur die Hauptleitung zu jedem Rohrsegment dargestellt.

Hindernisse ($BR - l_{SP} - L_{OP}$) (%) - (mm) - (mm)	Stöchiometrieverhältnis ϕ (-)					
	H ₂ -Luft (385 K)	H ₂ -Luft (2 bar)	H ₂ -H ₂ O-Luft (385 K)	H ₂ -CO ₂ -Luft	H ₂ -CO-Luft	H ₂ -CH ₄ -Luft
30-185-1000	0.6-1.0	-	-	-	-	-
30-185-2000	0.4-0.6	-	-	-	-	-
30/60-185-2000*	0.4-0.7	-	-	-	-	-
60-35-1000	0.4-1.0	-	-	-	-	-
60-95-1000	0.4-1.0	-	-	-	-	-
60-95-2000	0.4-1.0	-	-	-	-	-
60-185-1000	0.5-1.0	-	-	-	-	-
60-185-2000	0.4-2.4	0.4-1.0	0.3-1.0	5% H ₂ O: 0.5-1.5	5% CO ₂ : 0.4-1.5	7% CO: 0.4-2.7
				10% H ₂ O: 0.6-1.5	10% CO ₂ : 0.4-1.5	0.8
				15% H ₂ O: 0.8-1.2	20% CO ₂ : 0.8-1.2	1.0
60-185-3000	0.4-2.4	-	-	5% CO ₂ : 0.4-1.5	1% CO: 0.4-2.7	-
60-300-900	0.4-2.4	-	-	10% CO ₂ : 0.4-1.5	7% CO: 0.4-2.7	-
				5% CO ₂ : 0.4-1.5	7% CO: 0.4-2.7	-
				10% CO ₂ : 0.4-1.5		
60-300-1800	0.4-1.0	-	-	-	-	-
90-185-2000	0.3-1.0	-	-	-	-	-
“OHNE”	0.4-1.0	-	-	-	-	-

Tabelle 3.1: Versuchsmatrix in Abhängigkeit der verwendeten Hinderniskonfiguration sowie der Gemischzusammensetzung. Gemischzusammensetzungen ohne Angabe des thermodynamischen Zustandes wurden bei Umgebungsbedingung ($p \approx 1$ bar, $T \approx 295$ K) durchgeführt. * In dieser Konfiguration bestand die Hindernisstrecke aus Blenden der Blockierrate 30 und 60%, die abwechselnd angeordnet waren.

Luft Verbrennungsablauf untersucht. Im Gegensatz zu allen anderen Dreistoffgemischen wurde bei den Wasserstoff-Methan-Luft Gemischen (auch “Hythane”-Gemische genannt) kein definierter Anteil zugemischt, sondern ein Spektrum an Gemischzusammensetzungen bei konstanten Stöchiometrieverhältnissen untersucht. Aufgrund der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Gemischzusammensetzung wird die Sensitivität eines Gemisches stets über das entsprechende Stöchiometrieverhältnis klassifiziert. Das Stöchiometrieverhältnis ist definiert als Quotient aus dem tatsächlichen Brennstoff-Sauerstoff Verhältnis und dem stöchiometrischen Brennstoff-Sauerstoff Verhältnis:

$$\phi = \frac{\gamma_{Br.stoff}/\gamma_{O_2}}{(\gamma_{Br.stoff}/\gamma_{O_2})_{st\ddot{o}ch.}}, \quad (3.1)$$

wobei γ der entsprechende Volumenanteil am Gesamtgemisch ist. Die Definitionen für die jeweiligen Stöchiometrieverhältnisse der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Gemischzusammensetzungen findet sich in Anhang B. Eine Aufstellung der in dieser Arbeit untersuchten Gemischzusammensetzungen sowie der Hinderniskonfigurationen ist in Tabelle 3.1 dargestellt.

4 Messtechnik

Von besonderer Bedeutung bei der messtechnischen Erfassung von DDT-Phänomenen ist, dass die eingesetzten Messsysteme sowohl die Vorgänge im Bereich der sich beschleunigenden deflagrativen Flamme als auch im Bereich der stoßinduzierten Verbrennung präzise erfassen können müssen. Bei allen Messungen wurde daher ein speziell angepasstes, konventionelles Messsystem bestehend aus Photodioden und Drucksensoren verwendet, um zu jedem Versuchszeitpunkt die Position der voranlaufenden Stoßfront sowie der Flammenfront über die gesamte Länge des Explosionsrohres bestimmen zu können. Ergänzt wurde das konventionelle Messsystem durch einen Sensor zur transienten Bestimmung des Wärmestroms, der jedoch aufgrund seines empfindlichen Aufbaus nur selektiv eingesetzt wurde.

Detaillierte Untersuchung von lokalen Vorgängen an der Flammenfront können ausschließlich mit optischen Messverfahren durchgeführt werden. Diese Verfahren bieten den Vorteil, dass sie aufgrund ihres berührungs- und trägheitslosen Messprinzips den Verbrennungsprozess nicht stören und für Experimente mit hochtransienten Vorgängen prädestiniert sind [EJ99, Wol99, Brü95, MF01]. Die Anforderung an die räumliche und zeitliche Auflösung der dafür erforderlichen Laser- und insbesondere der Kamera- und Computersysteme stößt jedoch gerade in der DDT-Forschung an die Grenzen des derzeitigen Standes der Technik. Aufgrund der teilweise komplexen optischen Aufbauten war es zudem im Rahmen der durchgeführten Arbeiten nicht möglich, mehrere optische Messtechniken simultan einzusetzen. Daher mussten die Versuche für jedes optische Messverfahren wiederholt werden, was hohe Anforderungen an die Reproduzierbarkeit der einzelnen Versuche stellte.

Für die durchgeführten optischen Untersuchungen von schnellen Deflagrationen und Detonationen sowie deren Übergangsprozess wurden zwei komplementäre optische Messverfahren eingesetzt. Das Schlierenverfahren bietet die Möglichkeit, sowohl die Flammenfront als auch das Stoßsystem anhand ihrer Dichtegradienten zu visualisieren, wohingegen das Verfahren der planaren Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz (PLIPF) die Visualisierung der Flammenfront anhand von Schnittbildern ermöglicht.

Von besonderem Interesse wäre zudem die Bestimmung von lokalen

Strömungsgrößen mit Hilfe der Laser-Doppler Anemometrie zwischen der Stoß- und der Flammenfront bei schnellen Deflagrationen. Der versuchte Einsatz dieser Messtechnik führte zu keinen aussagekräftigen Ergebnissen, da die sekundären Stoßwellen hinter dem führenden Hauptstoß (siehe Abbildung 2.11, Seite 30) die einfallenden Laserstrahlen zu stark auslenken, um bei den lokal hohen Geschwindigkeiten eine ausreichende Datenrate zu ermöglichen.

4.1 Konventionelle Messtechnik

Zur Ermittlung der Flammenposition wurden 16 UV-empfindliche Photodioden verwendet, die in äquidistantem Abstand über der Rohrlänge verteilt waren. Die Lichtemission bei einem Wasserstoff-Luft Verbrennungsprozess hängt stark von der Verbrennungstemperatur ab. Die Reaktionszone selbst emittiert dabei hauptsächlich eine Strahlung im ultravioletten Bereich durch das OH-Radikal. Langwelligere Strahlungsbanden entstehen vorwiegend durch den bei der Reaktion gebildeten Wasserdampf, der sowohl im Infrarot-Bereich als auch bei sehr hohen Temperaturen, wie sie beispielsweise bei Detonationen auftreten, bei ca. 600 nm Licht emittiert. Um die Detektion der Flammenfront in allen Verbrennungsregimes mit identischen Photodioden durchführen zu können, müssen diese daher zum einen für die anfangs langsame deflagrative Verbrennung Licht im ultravioletten Bereich detektieren können. Die detonative Flammenausbreitung kann andererseits auch mit nicht UV-empfindlichen Photodioden detektiert werden, hier ist es vielmehr erforderlich, dass die Photodioden über eine schnelle Anstiegszeit verfügen. Als Sensoren wurden Silizium-Photodioden (Typ: S1336-BQ, Fa. Hamamatsu) verwendet, die in einem Spektralbereich von 190 nm bis 1100 nm empfindlich sind.

Die Photodioden sind in einem, in axialer Richtung verschiebbaren Röhrchen montiert, um die Appertur einschränken zu können (Abbildung 4.1). Die Öffnung der Röhrchen in das Explosionsrohr besitzen einen Durchmesser von 1.5 mm. Der damit einstellbare Sichtwinkel liegt zwischen 1° und 20° . Bei dem Rohrdurchmesser von 66 mm ergibt sich eine Appertur bei zurückgezogener Fotodiode von 1 mm und bei vorgeschobener Photodiode von 12 mm an der gegenüberliegenden Rohrwand. Das

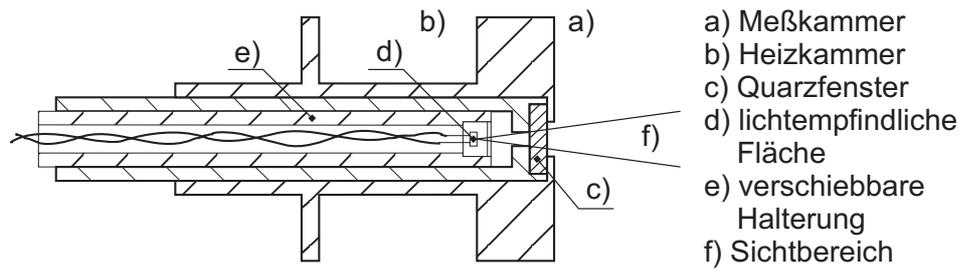


Abbildung 4.1: Appertur der eingesetzten Photodioden [EEM98].

Röhrchen ist mit Quarzglasscheiben zu dem Explosionsrohr hin abgeschlossen, um die Transmission des Glases bis in den ultravioletten Bereich zu gewährleisten.

Bei Versuchen mit erhöhter Anfangstemperatur wurde ein Quarzglaslichtwellenleiter zwischen den Photodioden und der lichtempfindlichen Fläche der Photodiode und dem Quarzfenster angebracht, um die Photodioden vor den hohen Temperaturen zu schützen.

Die von der Photodiode detektierte Lichtemission liefert nur sehr geringe Signalstärken, die von einem nachgeschalteten Verstärker auf von der Messwert erfassbare Signalstärken umgesetzt werden. Aufgrund der Abhängigkeit der Lichtemission von dem Verbrennungsmodus ist es erforderlich, den Verstärkungsfaktor entsprechend anzupassen. Der Verstärker erlaubt einstellbare Verstärkungsfaktoren zwischen 10^5 und $3 \cdot 10^9$ bei einer Anstiegszeit von ca. $1 \mu\text{s}$. Der vom Sensor proportional zum Lichteinfall gelieferte Strom wird, wie in Abbildung 4.2 gezeigt, von einem Strom-Spannungsverstärker vorverstärkt und anschließend auf die Ausgangsamplitude nachverstärkt. Das analoge Signal wird mit einem einstellbaren Komparatorwert verglichen. Bei einem Überschreiten des Komparatorwerts liegt ein TTL Signal am Digitalausgang an. Die Komparatorschwelle wurde mit 1 V angesetzt, was im Rahmen der durchgeführten Versuche dem steilsten Anstieg des Photodiodensignals entspricht. Dieser Schwellwert ist nach Ardey [Ard98] am besten für die Detektion der Flammenposition geeignet. Aus den Positionsdaten der Flammenfront wurde mittels eines von Stoer und Bulirsch [SB78] beschriebene Spline-Interpolationsverfahrens eine Funktion zur Beschreibung der zeitlichen Flammenposition über der Rohrlänge (“ $x - t$ Diagramm”) ermit-

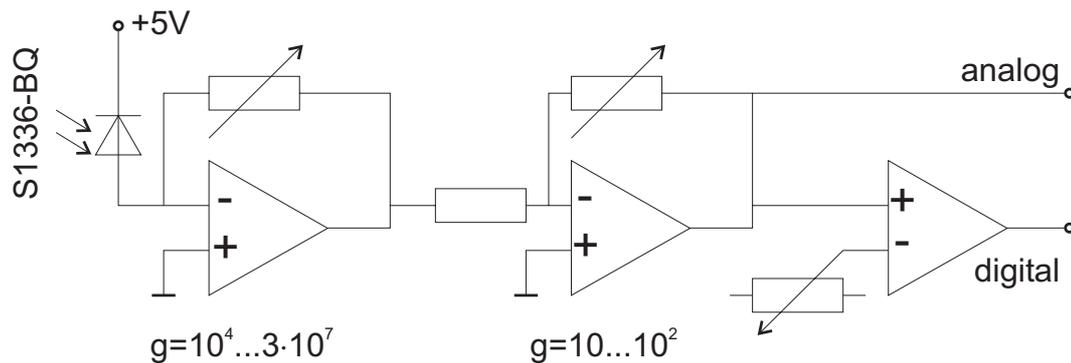


Abbildung 4.2: Verstärkerschaltbild der eingesetzten Photodioden [EEM98].

telt, aus deren Ableitung die Geschwindigkeit der Flammenfront über der Rohrlänge (“ $x - u_F$ Diagramm”) berechnet wurde. Die Adaption und Eignung dieses Spline-Interpolationsverfahrens zur Beschreibung der transienten Flammenausbreitung wurde bereits von Ardey [Ard98] nachgewiesen. Bei den in Kapitel 5 dargestellten maximalen Flammengeschwindigkeiten ist zu beachten, dass diese als gemittelte Größen zwischen zwei Photodioden zu verstehen sind, die maximale lokale Flammengeschwindigkeit (z.B. im engsten Blendenquerschnitt) kann mitunter deutlich höher sein.

Die messtechnische Erfassung des lokalen zeitlichen Druckverlaufs im Explosionsrohr erfolgte mit sechs piezokapazitiven Druckaufnehmern (Typ 601A, Fa. Kistler), von denen fünf über die Rohrlänge verteilt und einer stirnseitig im Endflansch angebracht war. Die Verteilung der Drucksensoren über der Rohrlänge wurde im Laufe der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente variiert, um gezielt bestimmte Phänomene zu untersuchen. Die Druckaufnehmer sind aufgrund ihres Messprinzips speziell für die Messung hochtransienter Vorgänge geeignet. Die vom Sensor gelieferte Ladung ist zum Druck proportional und wird über die Zeit mittels eines Ladungsverstärkers (Typ 5011, Fa. Kistler) integriert. Um ein undefiniertes Abfließen der Ladung zu vermeiden, wird im Verstärker durch einen Widerstand ein definierter Abfluss der Ladung innerhalb eines bestimmten Zeitraumes erzwungen. Aufgrund der extrem kurzen Messzeiten (< 20 ms) konnte der am Ladungsverstärker ausgegebene Druckwert ohne Korrekturrechnung (siehe [Ard98]) verwendet werden. Aus den Drucksignalen lässt sich durch die zeitliche Bestimmung des ersten Druckanstiegs durch die voranlaufende Stoßwelle wie bei der Auswertung der Flammengeschwindigkeit

der Verlauf der Stoßwellengeschwindigkeit über der Rohrlänge berechnen.

Rechnet man jedoch aus der Stoßgeschwindigkeit die Stoßstärke zurück, so lag dieser Wert stets geringfügig unter dem gemessenen Druckspitzenwert. Der Grund dafür war, dass die Drucksensoren anlagenbedingt ca. 5 mm von der Rohrfläche zurückversetzt waren. Daher trifft ein Teil der Stoßwelle durch Beugungs- und Reflektionseffekte an dem Rücksprung stirnseitig auf den Sensor, weshalb durch die Druckreflektion ein höherer Druck gemessen wurde. Aus diesem Grund wurden die Druckangaben der seitlichen Aufnehmer über die Druckwellengeschwindigkeit zurückgerechnet.

Als zusätzliches konventionelles Messsystem wurde ein schneller Wärmestromsensor eingesetzt. Dieser Sensor besteht aus einer Atomlagen-Thermosäule, die in einer ca. 1 μm dünnen, hochoberflächensupraleitenden Keramiksicht so auf ein einkristallines Substrat aufgebracht wurde, dass die Kristallachse der Keramik um einen Winkel zur Oberfläche geneigt ist [LKS⁺92, FOR99]. Liegt ein Temperaturgradient zwischen der Oberfläche der Kristallschicht und dem Substrat an, so ergibt sich ein Wärmestrom senkrecht zu der Schicht, der in Form einer Spannung abgegriffen werden kann. Diese Sensoren wurden ursprünglich zur Leistungsmessung von Laser-Lichtquellen verwendet, da sie eine extrem kurze Ansprechzeit im Bereich einiger Nanosekunden besitzen. Aufgrund dieses schnellen Ansprechverhaltens sind sie prädestiniert für den Einsatz zur Untersuchung schneller Flammenausbreitungsphänomene. Die mit diesem Sensor bestimmten Wärmeströme sind aufgrund der Art ihrer Kalibrierung mit CO₂-Lasern als Größenordnungen zu interpretieren, welche aber wertvolle Informationen für die numerische Simulation von Flammenausbreitungsphänomenen liefern, die vielfach mit adiabaten Randbedingungen angesetzt werden. Des Weiteren konnte mit diesem Sensor in Teilen der Versuchsanlage, die nicht optisch eingesehen werden können, Informationen über den Abstand zwischen Stoßwelle und Flammenfront unmittelbar vor dem DDT bestimmt werden.

Die Daten der konventionellen Messtechniksysteme wurden in einen PC mit Digitalkarten (für die digitalen Photodiodensignale) sowie mittels dreier A/D-Wandlerkarten mit Summenabstraten von jeweils bis zu 250 kHz eingelesen.

4.2 Optische Messtechnik

4.2.1 Schlierenphotographie

Die klassische Messmethode der Schlierenphotographie, die in ihren Grundzügen bereits von Toepler [Toe64] im Jahr 1864 beschrieben wurde, bietet für die Untersuchung der schnellen vorgemischten Verbrennung die Möglichkeit, über den Dichtegradienten zwischen unverbrannten und verbrannten Gas den Flammenfortschritt sowie gleichzeitig die Struktur der der Flamme voranlaufenden Stoßwellen zu visualisieren. Der physikalische Hintergrund der Schlierenmethode basiert auf der Ablenkung eines parallelen Lichtstrahls, der auf unterschiedliche Brechungsindizes – in diesem Fall durch Dichtegradienten hervorgerufen – in einem transparenten Medium trifft. Die Überlagerung von gebrochenen und ungestörten Lichtstrahlen wird dabei so abgebildet, dass die Dichtegradienten in dem Medium auf einer zweidimensionalen Abbildung lokalisiert werden können.

Als optischer Aufbau wurde ein sogenannter “Z-Aufbau” verwendet, dessen Grundstruktur in Abbildung 4.3 dargestellt ist. Dieser Aufbau besteht in seiner Grundstruktur aus einer Lichtquelle, deren Strahlen über

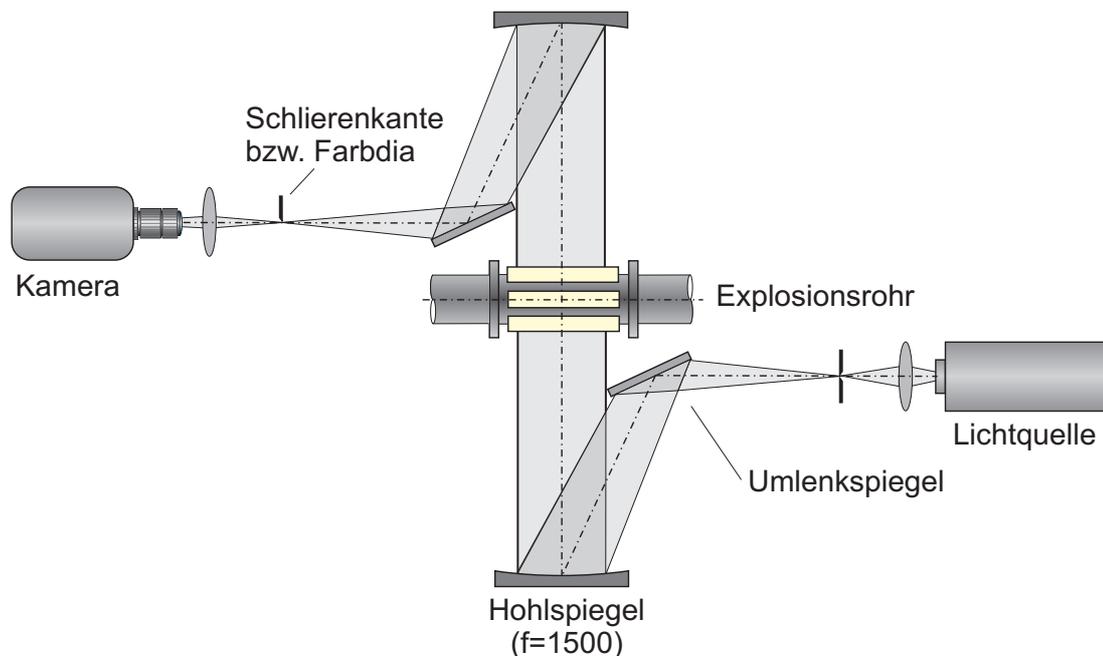


Abbildung 4.3: Optischer Aufbau der Schlierenphotographie.

einen Planspiegel zur Strahlumlenkung und einen Hohlspiegel in ein paralleles Lichtbündel abgebildet wurde. Nach dem Durchtritt des parallelen Strahlenbündels durch die Versuchskammer wird dieses über einen weiteren Hohlspiegel auf einen Punkt fokussiert, an dem sich die Schlierenblende befindet. Die Schliere in der Messkammer wird über ein Objektiv in die Bildebene der Kamera scharf abgebildet. Als Lichtquelle für diese "klassischen" Schlierenphotographien diente ein Ar-Ionen Laser, dessen kontinuierlicher Strahl über einen akusto-optischen Modulator (AOM) in Lichtpulse mit einer Dauer von ca. 200 ns unterteilt wurde. Damit konnten sowohl Einzelaufnahmen mit einer herkömmlichen CCD-Kamera (Typ Flashcam, Fa. PCO, Auflösung 752×286 Bildpunkte) als auch Bildserien mit einer Hochgeschwindigkeits-Videokamera (Typ Ektapro HS 4540, Fa. Kodak; verwendete Einstellung: 18 000 Bilder/s bei einer Auflösung von 256×64 Bildpunkten) durchgeführt werden.

Eine quantitative zweidimensionale Auswertung der Dichtegradienten aus den Schlierenaufnahmen, wie sie von Schardin [Sch34] dargestellt wurde, gestaltet sich bei der turbulenten Flammenausbreitung aufgrund der dreidimensionalen Flammenkontur sowie der großen Unterschiede in den vorkommenden Dichtegradienten (sehr große Gradienten bei den Stoßwellen, kleine Gradienten an der Flammenfront, vgl. Abbildung 2.2, Seite 10) sehr schwierig. Um dennoch die Stärke der vorkommenden Dichtegradienten sowie ihre Ausbreitungsrichtung beurteilen zu können, wurde das Farbschlierenverfahren verwendet. Der Aufbau ist grundsätzlich zu der in Abbildung 4.3 dargestellten Anordnung identisch. Unterschiedlich sind die Lichtquelle, die Schlierenblende und das Kamerasystem. Als Lichtquelle muss ein System verwendet werden, das über den gesamten sichtbaren Spektralbereich Licht emittiert, um jede Farbe ansprechen zu können. Aus diesem Grund wurde eine kurzblitzende Lichtbogenlampe verwendet. Die größten technischen Anforderungen stellt das Kamerasystem dar. Aufgrund des starken Eigenleuchtens der Flammenfront bei detonativen Vorgängen (vgl. Abschnitt 4.1) muss die verwendete Kamera über eine schnelle Verschlusszeit ($\approx 1 \mu\text{s}$) verfügen sowie farbempfindlich sein. Diese Voraussetzungen wurden von dem Kamertyp "Sensicam" der Fa. PCO erfüllt. Um jedem abgelenkten Lichtstrahl und somit jeder Stärke eines Dichtegradienten eine eindeutige Farbe zuzuordnen, wurde anstelle der Schlierenkante ein Farbdia mit einem kontinuierlichen Farbstreifenmuster verwendet (siehe z.B. Farb-

skala in Abbildung 5.5, Seite 88). In der Mitte des Dias befindet sich ein Metallstreifen, auf den der Fokus des ungestörten Schlierenbildes einjustiert wurde, so dass der Bildhintergrund nahezu schwarz erscheint. Dadurch lassen sich die dem Dichtegradienten zuzuordnenden Farben besser klassifizieren. Der Dichtegradient der führenden Stoßfront bei Detonationen ist so stark, dass mit dem herkömmlichen Schlierenverfahren die Reaktionszone selbst nur schwer zu lokalisieren ist, wohingegen das Farbschlierenverfahren (vgl. Abbildung 2.15, Seite 40) eine genaue Unterscheidung zulässt. Für eine detaillierte Beschreibung des klassischen sowie des Farbschlierenverfahrens sei auf Klein [Kle93] sowie Eder und Jordan [EJ01] verwiesen.

Der Nachteil der Schlierenphotographie besteht jedoch darin, dass lediglich integrale Bilder über die gesamte Tiefe des Messvolumens aufgezeichnet werden können, d.h. die Konturlinien in den Schlierenbildern geben nur die maximale Ausdehnung der Flammenoberfläche wieder. Des Weiteren kann aufgrund der Visualisierung von Dichtegradienten auf den Messergebnissen nicht zwischen der Reaktionszone selbst und ihrem heißen Abgas unterschieden werden. Für detailliertere Untersuchungen der Flammenstruktur wird deshalb das Verfahren der planaren Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz angewandt.

4.2.2 Planare Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz

Die Messmethode der Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz (LIPF) bietet die Möglichkeit, Spezieskonzentrationen aber auch Temperatur-, Dichte- und Druckverteilungen eines Gases zu bestimmen. Im Gegensatz zu Streulichtverfahren wie z.B. der Rayleigh- oder Ramanstreuung zeichnet sich das LIPF-Verfahren durch eine sehr hohe Signalstärke aus, wodurch eine zweidimensionale Messung – auch *planare* Laser-induzierte Prädissoziations-Fluoreszenz (PLIPF) genannt – möglich ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das PLIPF-Verfahren zur qualitativen Bestimmung der OH-Konzentration verwendet. Wie in Abbildung 2.14 (Seite 37) für einen detonativen Verbrennungsvorgang dargestellt, ist die Konzentration des OH-Moleküls unter den in der Reaktionszone auftretenden Radikalen mit am größten (ca. 2.4 vol % bei einem 20 vol % H₂-Luft Gemisch), wodurch eine Detektion mit hohem Signal-Rausch Verhältnis

(SNR) möglich ist. Durch das sich hinter der Reaktionszone einstellende thermische Gleichgewicht zwischen dem OH-Radikal und dem restlichen heißen Abgas ist eine genaue Bestimmung der eigentlichen Reaktionszone nur mit einem aufwendigen Auswertungsalgorithmus (siehe [Ard98]) möglich. Für eine genaue Bestimmung der Reaktionszone würde sich daher beispielsweise besser die Visualisierung des H-Moleküls eignen, das sehr schnell am Ende der Reaktionszone wieder abgebaut wird. Dies konnte jedoch aufgrund der zur Verfügung stehenden Laser-Lichtquellen im Rahmen dieser Arbeit nicht realisiert werden. Zum anderen traten gerade hinter der Reaktionszone interessante Effekte auf, die sich wiederum nur anhand des OH-Moleküls beobachten ließen, weshalb an dieser Methode festgehalten wurde.

Die folgende Darstellung der physikalischen Grundlagen der Laser-induzierten Prädissociations-Fluoreszenz geht nur soweit ins Detail, wie dies zum Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen erforderlich ist. Für eine weitergehende Darstellung der physikalischen Grundlagen sei auf Eckbreth [Eck96], Kohse-Höinghaus [KH92] und Gerlach [Ger96] verwiesen.

Das Prinzip des LIPF-Verfahrens beruht auf der Absorption von Photonen, wodurch Moleküle von einem bestimmten Grundzustand in einen angeregten Zustand übergehen. Die Absorption durch Moleküle ist über den Einsteinkoeffizienten B_{12} charakterisiert. Für das OH-Molekül sind $X^2\Pi$ bzw. $A^2\Sigma^+$ die relevanten elektronischen Niveaus, siehe Abbildung 4.4. Innerhalb der elektronischen Energieniveaus ist der Zustand eines Moleküls durch die Schwingungsquantenzahl v sowie die Rotationsquantenzahl k gekennzeichnet. Nach einer kurzen Lebensdauer im angeregten Zustand (ca. $10^1 - 10^2$ ns, [Koc92]) geht das angeregte Molekül in einen niedrigeren energetischen Zustand über. Dieser Übergang kann auf verschiedenen Arten erfolgen, wovon die drei wichtigsten in Abbildung 4.4 mit Pfeilen gekennzeichnet sind. Der Energieverlust eines angeregten Moleküls über eine spontane Fluoreszenz unter Emission eines Photons wird durch den Einsteinkoeffizienten für Fluoreszenz A_{21} beschrieben. Eine weitere Möglichkeit der Energieabgabe des angeregten Moleküls sind Stöße mit anderen Molekülen in der Umgebung. Dieser Übergang wird über die Stoßrate Q_{21} repräsentiert. Wird z.B. der Übergang $A^2\Sigma^+, v = 0 \leftarrow X^2\Pi, v = 0$

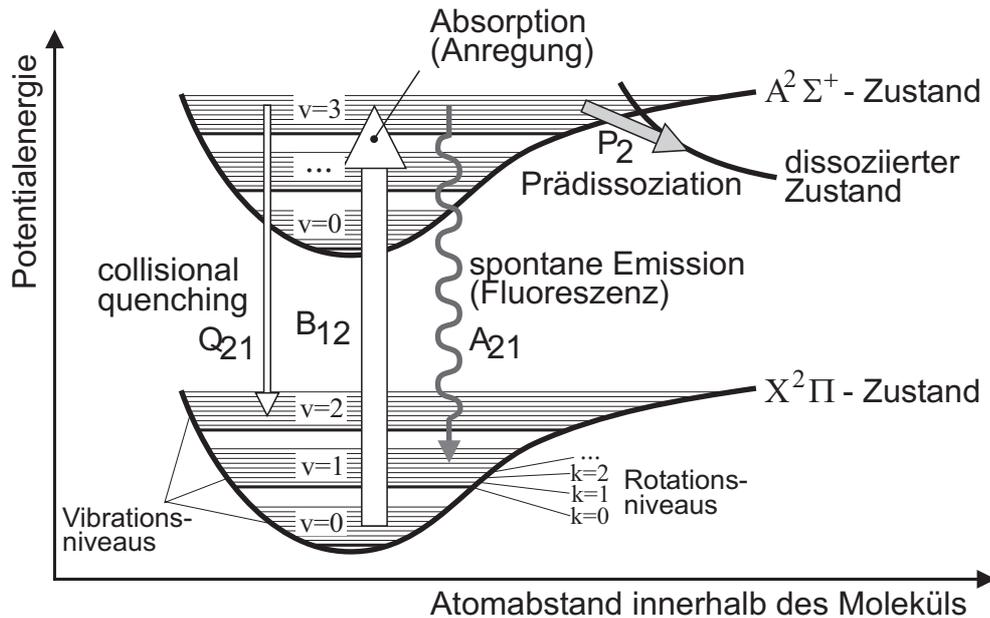


Abbildung 4.4: Potentialenergie-Kurven des Grund- sowie des angeregten Zustands im OH-Molekül mit möglichen Übergängen.

angeregt, so treten vornehmlich diese beiden Übergangseffekte auf. Man spricht in diesem Fall von Laser-induzierter Fluoreszenz (LIF). Bei dem OH-Molekül tritt dieser Effekt bei einer eingestrahelten Wellenlänge von 308 nm auf. Aufgrund der Druck- und Temperaturabhängigkeit von Q_{21} gestaltet sich die Bestimmung dieses Faktors als sehr schwierig. Wird hingegen der Zustand $A^2\Sigma^+, v = 3 \leftarrow X^2\Pi, v = 0$ angeregt, so wird ein Großteil der angeregten Moleküle dissoziiert. Die entsprechende Prädissoziationsrate wird durch den Koeffizienten P_2 repräsentiert.

Die Intensität des detektierten Fluoreszenzlichts S_F lässt sich berechnen mittels

$$S_F = C_{setup} N_{ges} B_{12} I_\nu \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21} + P_2}, \quad (4.1)$$

wobei C_{setup} eine Konstante ist, die von der Messanordnung sowie der Wellenlänge der eingesetzten Lichtquelle abhängt. N_{ges} repräsentiert die Anzahl der beobachteten Moleküle und I_ν die spektrale Energiedichte der Lichtquelle. Für den Fall der Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz können die Faktoren A_{21} und Q_{21} im Nenner von Gleichung (4.1) vernachlässigt werden, so dass sich der Bruch – auch *Stern-Volmer-*

Faktor genannt – auf A_{21}/P_2 reduziert. Aufgrund der Tatsache, dass P_2 unabhängig von Druck und Temperatur ist, lässt sich feststellen, dass die gemessene Fluoreszenzintensität bei dem LIPF Verfahren direkt proportional zu der momentan vorhandenen Teilchenzahl ist. Diese Annahme gilt bei Umgebungsdruck, für höhere Drücke, wie sie auch bei Detonationen vorkommen, gilt $Q \approx P$ [Eck96].

Die Anregung des OH-Moleküls von einem bestimmten Rotationsniveau des $X^2\Pi, v = 0$ Zustands in ein bestimmtes Rotationsniveau des $A^2\Sigma^+, v = 3$ Zustands hängt von der eingestrahlten Wellenlänge ab. Um definierte Zustände anregen zu können, ist ein schmalbandiger Laser erforderlich, der sich gezielt auf diese Wellenlängen abstimmen lässt. Der Verlauf der OH-Fluoreszenzsignalintensität in Abhängigkeit der Anregungswellenlänge ist in Abbildung 4.5 für zwei typische thermodynamische Zustände bei einer deflagrativen und einer detonativen Verbrennung dargestellt. Daraus ist deutlich ersichtlich, dass eine Anregungswellenlänge, die bei einer deflagrativen Verbrennung die größte Signalstärke erreicht, nicht der optimalen Wellenlänge für die Anregung der bei Detonationen auftretenden OH-Moleküle entspricht. Die Nomenklatur der Bezeichnungen der einzelnen Anregungslinien hängt von den Grund- und Anregungsniveaus ab und soll an dieser Stelle nicht weiter erläutert werden. Im Rahmen dieser Untersuchungen wurde die $P_2(8)$ Linie bei einer Wellenlänge von 248.46 nm gewählt. Der $P_1(8)$ Übergang weist zwar rechnerisch für eine Gleichdruckverbrennung eine höhere Fluoreszenzintensität auf, jedoch lag diese Wellenlänge bereits am Randbereich der mit dem vorhandenen Laser noch schmalbandig einjustierbaren Laserwellenlänge, so dass der $P_2(8)$ Übergang für die Gleichdruckverbrennung die größte Intensität aufwies. Wie in Abbildung 4.5 dargestellt, würde sich für die Visualisierung der Reaktionszone anhand des OH-Moleküls bei Detonationen eher der $Q_1(11)$ Übergang eignen, um ein maximales Signal-Rausch Verhältnis zu erzielen. Da im Rahmen dieser Arbeit sowohl deflagrative als auch detonative Flammen untersucht wurden, erwies sich der $P_2(8)$ -Übergang für beide Verbrennungsregime als besser geeignet, da die Reaktionszonen von deflagrativen Flammen einen ca. 10-fach niedriger Volumenanteil an OH aufweisen. Abbildung 4.6 zeigt ein von Gerlach [Ger96] bestimmtes Emissionsspektrum von OH nach Anregung des $P_1(8)$ Übergangs, das sich jedoch nur unwesentlich von einer Anregung durch den $P_2(8)$ Übergang unterscheidet. Ent-

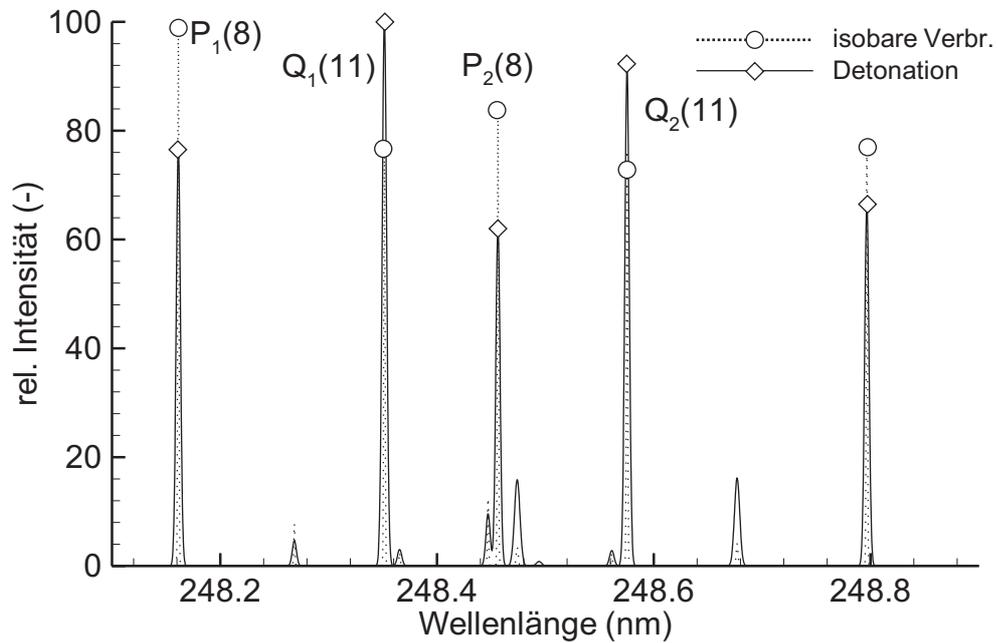


Abbildung 4.5: Anregungsspektrum des OH-Radikals im Abstimmbereich des KrF-Eximer Lasers, berechnet mit Lifbase [LC99]. Die Maximalfluoreszenz jedes Spektrums ist auf den Wert 100 normiert.

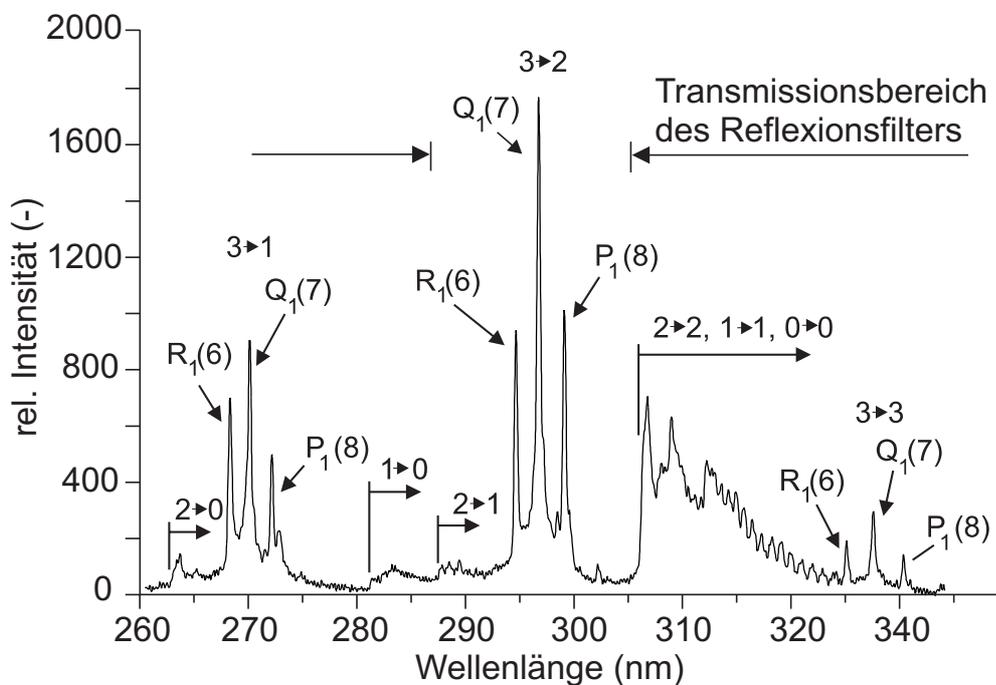


Abbildung 4.6: Emissionsspektrum von OH bei Anregung des $P_1(8)$ Übergangs, [Ger96].

sprechend des nach der Anregung in den $A^2\Sigma^+, v = 3$ Zustand erreichten Grundniveaus lassen sich charakteristische Wellenlängenbereiche abgrenzen, wobei der Übergang $A^2\Sigma^+, v = 3 \rightarrow X^2\Pi, v = 2$ bei einer Wellenlänge von ca. 298 nm die stärkste Fluoreszenzemission aufweist.

Der optische Aufbau der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten PLIPF-Messungen ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Als Lichtquelle wurde ein KrF-EXCIMER-Laser (Typ Compex 150, Fa. Lambda-Physik, Pulsenergie ca. 450 mJ) verwendet, der im schmalbandigen Oszillator-Verstärker-Modus betrieben wurde. Die Pulsdauer des Lasers beträgt ca. 17 ns, wodurch die Verteilung der OH-Radikale sowohl chemisch als auch strömungsmechanisch eingefroren dargestellt werden kann. Der Laserstrahl wurde mit der in Abbildung 4.7 dargestellten Linsenanordnung divergent aufgeweitet und von unten in die Messstrecke eingespiegelt. Dadurch entstand ein Lightsheet mit einer Breite von ca. 100 mm sowie einer Dicke von 0.5 mm in der Messkammer. Die Polarisations Ebene des Laserlichts im

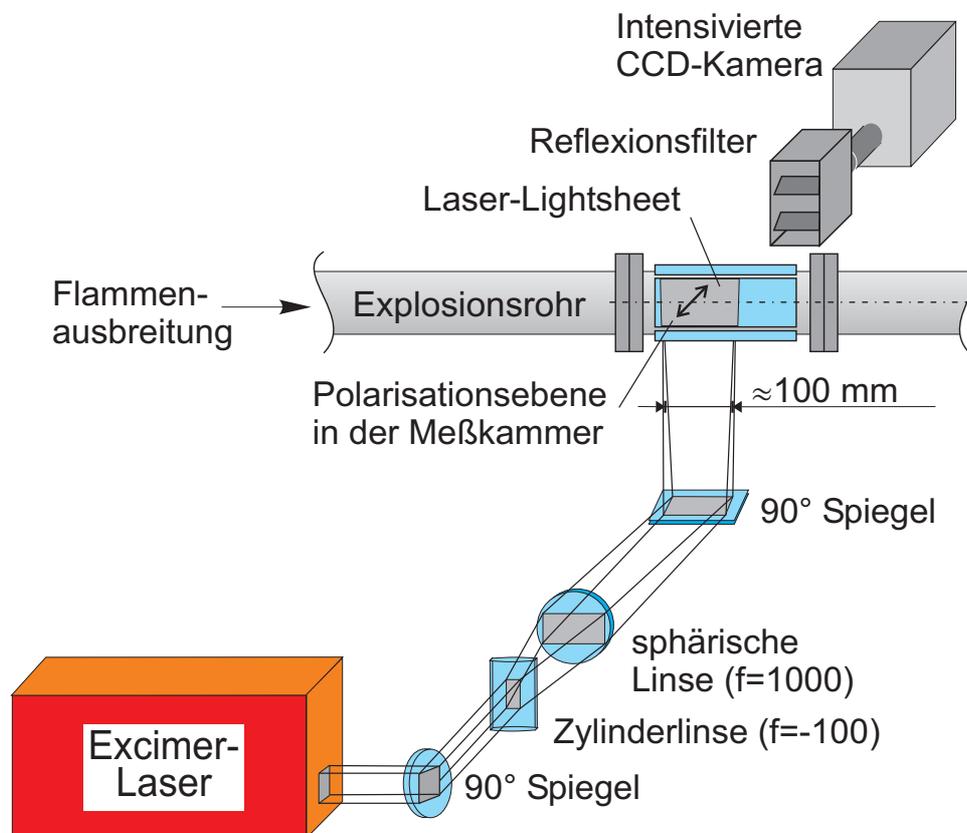


Abbildung 4.7: Optischer Aufbau der Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz.

Lightsheet war bei dieser Anordnung parallel zur Achse des Detektionssystem, wodurch nur ein minimaler Anteil des durch Rayleigh-Streuung entstandenen Störlichts in Richtung des Detektionssystems gestreut wurde [RYRV97]. Um die Rayleighstreuung sowie die Eigenfluoreszenz der Flamme zu filtern, wurde ein Reflexionsfilter eingesetzt, der einen Transmissionsbereich von 20 nm im Bereich der stärksten Emissionsübergänge (siehe Abbildung 4.6) aufweist. Zur Detektion des Fluoreszenzsignals wurde eine UV-intensivierte CCD-Kamera (Typ: Flamestar, Fa. LaVision, Auflösung 574×384 Pixel) verwendet. Pro Versuch konnte aufgrund der begrenzten Pulsrate des Lasers nur ein Bild aufgenommen werden.

5 Ergebnisse der Versuche

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Versuche an dem in Kapitel 3 dargestellten Explosionsrohr werden in vier Teile untergliedert. Im ersten Teil werden ausschließlich reine Wasserstoff-Luft Gemische unter Umgebungsbedingungen betrachtet. Dieses Gebiet wurde, wie in Kapitel 2 verdeutlicht, bereits von vielen Autoren eingehend untersucht und Kriterien für das Auftreten der einzelnen Verbrennungsphänomene abgeleitet. Wie in der Folge gezeigt wird, weisen diese Theorien teilweise erhebliche Erklärungslücken auf, auf die gezielt im ersten Abschnitt eingegangen wird. Wesentlicher Bestandteil der Analyse der Brennphänomene sind die erzielten Erkenntnisse mittels der verwendeten (laser-)optischen Messverfahren. Begleitet werden alle Versuchsreihen des weiteren von detaillierten reaktionskinetischen Betrachtungen, die zur Analyse der beobachteten Phänomene einen wichtigen Beitrag leisten. Weniger bekannt hingegen ist das Brennverhalten von Wasserstoff-Luft Gemischen unter Variation des thermodynamischen Anfangszustands sowie unter Beimengung einer dritten Gaskomponente, welche Gegenstand weiterer Abschnitte dieses Kapitels sind.

5.1 Schallnahe Deflagration, Detonation und DDT in Wasserstoff-Luft Gemischen

Wasserstoff-Luft Gemische unter Umgebungsbedingungen zeichnen sich durch einen weiten detonationsfähigen Gemischbereich aus. Mit einer minimalen Detonationszellweite von ca. 15 mm für ein stöchiometrisches Gemisch besteht selbst in sehr kleinskaligen Geometrien die Möglichkeit eines detonativen Verbrennungsablaufs. Für die Dimension des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Explosionsrohres ergeben sich unter Verwendung bekannter, konservativer Kriterien (vgl. Kapitel 2) die in Tabelle 5.1 angegebenen Detonationsgrenzen.

Von besonderem Interesse waren bei der Wahl der durchgeführten Versuche Gemischzusammensetzungen im Bereich der geometriebedingten Detonationsgrenzen auch im Hinblick auf die Fragestellung, unter welchen Bedingungen Marginaldetonationen infolge eines DDT-Prozesses entstehen

Tabelle 5.1: Geometriebedingte Detonationsgrenzen in dem 66 mm Detonationsrohr.

Kriterium	H ₂ -Konzentration
$D > \lambda$	19.5 – 53 vol % H ₂ (ϕ 0.58–2.68)
$D > \lambda/\pi$	16.4 – 61 vol % H ₂ (ϕ 0.47–3.72)

können.

Abbildung 5.1 zeigt eine Verteilung der charakteristischen reaktionskinetischen Größen für Wasserstoff-Luft Gemische über dem Stöchiometrieverhältnis. Das Expansionsverhältnis σ liegt im detonativen Gemischbereich für alle relevanten Zel’dovich-Zahlen β in dem Bereich zwischen 5 und 7. Im Vergleich mit verschiedenen Messungen aus der Literatur ermöglichen diese Expansionsverhältnisse eine Beschleunigung der Flamme in den detonativen Bereich bzw. in das Regime der schallnahen Deflagration, d.h., das σ -Kriterium stellt für H₂-Luft Gemische keinen limitierenden Faktor für die Möglichkeit des Übergangs von der Deflagration in die Detonation dar.

Die Berechnung der Stabilitätsparameter einer Detonation (Abbildung 5.1 unten) zeigt, dass der auf die von Neumann (VN) Temperatur bezogene Aktivierungsenergieparameter θ gerade dort sein Maximum erreicht, wo die geometrische Detonationsgrenze einer “planaren” Detonationsfront ($D = \lambda$) in der eingesetzten Versuchsanlage liegt. Einen ähnlichen Verlauf zeigt das von Moen et al. [MST⁺86] verwendete Stabilitätskriterium $(\delta\tau/\tau)/(\delta Ma/Ma)$. Alle Wasserstoff-Luft Gemische liegen über einem Wert von 10, den Moen et al. als Grenze für eine reguläre zellulare Detonationsstruktur angaben, d.h. alle H₂-Luft Gemische sollten demnach eine unregelmäßige Struktur aufweisen, wobei der höchste Grad an Unregelmäßigkeit bei einer Gemischzusammensetzung von $\phi = 1$ zu erwarten ist.

Die berechneten Reaktionszonenlängen Δ für Detonationen sind ebenso sehr sensitiv im Bereich der unteren Detonationsgrenzen. Theoretisch können hier Werte bis zu 1 cm bei einer planaren Detonation erreicht werden. Die untere Detonationsgrenze stellt deshalb gerade bei den gegebenen geometrischen Bedingungen des eingesetzten Explosionsrohres einen sehr

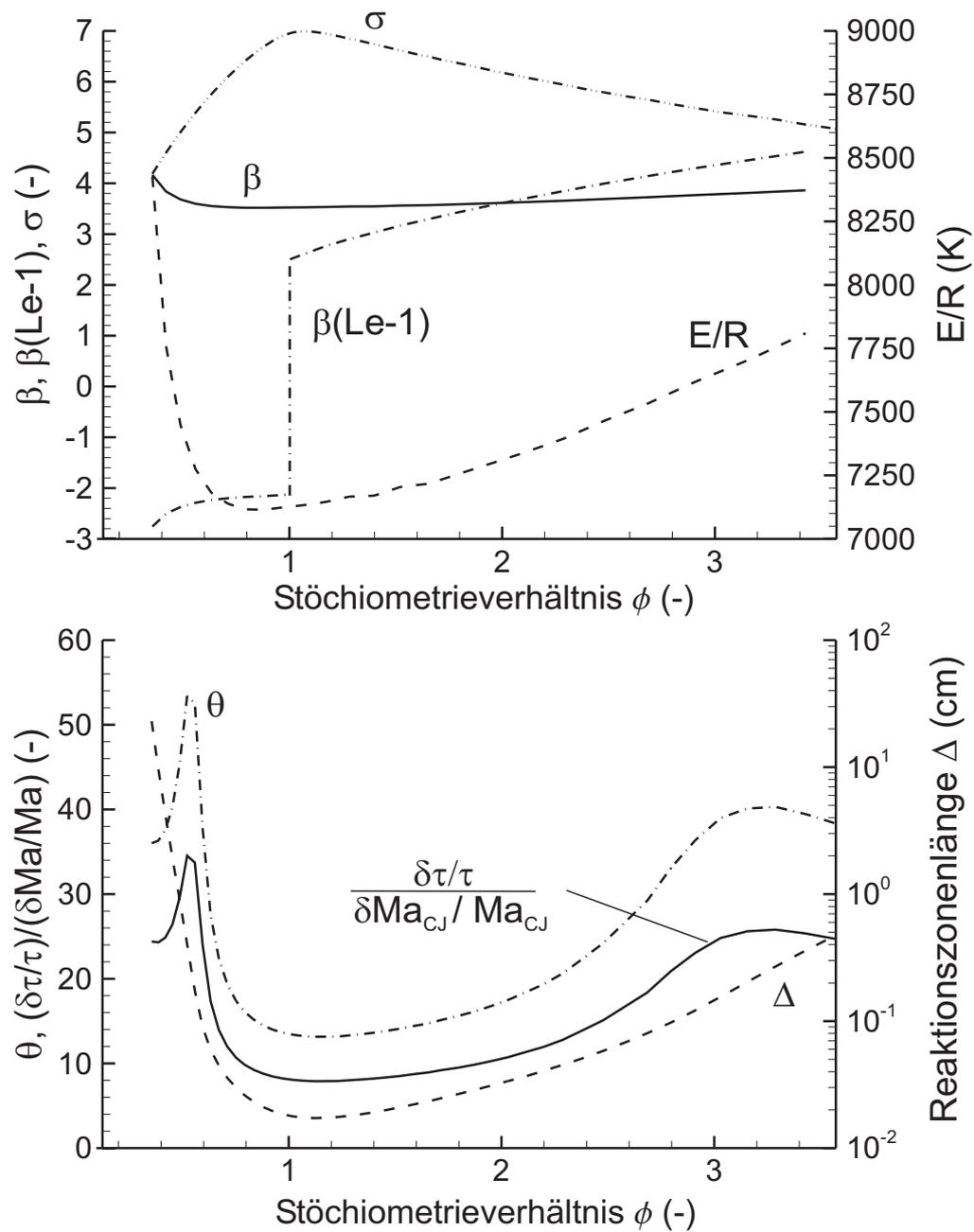


Abbildung 5.1: Charakteristische reaktionskinetische Größen von Deflagrationen (oben) und Detonationen (unten) in Wasserstoff-Luft Gemischen bei Umgebungsbedingungen ($p = 1$ bar, $T = 293$ K).

instabilen Detonationsbereich dar, der deshalb Gegenstand intensiver experimenteller Betrachtungen für die DDT-Prozesse war.

5.1.1 Flammenausbreitung in der Hindernisstrecke

Das Beschleunigungspotential einer Flammenfront in den im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten, verschiedenen Hindernisstrecken stellt die Grundlage für die Untersuchung von DDT-Vorgängen in Abhängigkeit unterschiedlicher Flammengeschwindigkeiten dar. Maßgeblich dafür ist die Geschwindigkeit am Austritt der Hindernisstrecke in das unblockierte Rohr (siehe Abbildung 3.2, Seite 60), sowie das dort entsprechend vorherrschende Verbrennungsregime. Hier kann als Vergleich auf eine breite Datenbasis der Literatur zurückgegriffen werden. Als Vergleichskriterium werden dabei in der Literatur (u.a. [BCD⁺00]) meist Versuche von Peraldi et al. [PKL86] herangezogen, bei welchen Explosionsrohre der Durchmesser D von 5, 15 und 30 cm mit Blockierraten von $BR = 0.43$ verwendet wurden. Die daraus resultierenden Daten bildeten die Grundlage für das in Kapitel 2 dargestellte Kriterium $d \geq \lambda$ für das Auftreten von Quasidetonationen in der Hindernisstrecke. Der Hindernisabstand bei den meisten in der Literatur durchgeführten Versuchen zum Brennverhalten in Hindernis-bestückten Rohrabschnitten beträgt einen Rohrdurchmesser. Um die Datenbasis zu erweitern wurden in dieser Arbeit zusätzlich Hinderniskonfigurationen untersucht, bei denen der Hindernisabstand l_{SP} ein mehrfaches des Rohrdurchmessers betrug.

Abbildung 5.2 zeigt maximale Flammengeschwindigkeiten innerhalb der Hindernisstrecke des Explosionsrohres für sieben ausgewählte Hinderniskonfigurationen. Periodische Hindernisse mit einem Abstand von $l_{SP}/D < 1.5$ erzielten dabei Flammenbeschleunigungen analog zu dem Ergebnis von Peraldi et al., d.h. die maximale deflagrative Geschwindigkeit wurde auch im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente nahezu gleich der isobaren Schallgeschwindigkeit bestimmt. Ist die Voraussetzung $d \geq \lambda$ erfüllt, so ist es nach allgemein bekannten Kriterien möglich, dass ab einer kritischen Gemischzusammensetzung eine Quasidetonation auftritt. Für Hindernisabstände im Bereich des Rohrdurchmessers konnte dieses Kriterium bestätigt werden, vgl. Konfiguration “60-95-2000” (Notation der Hindernisbezeichnung siehe Kapitel 3).

Wählt man hingegen einen größeren Hindernisabstand bei Blockierraten bis zu 60%, so erkennt man aus Abbildung 5.2 deutlich, dass Quasidetonationen

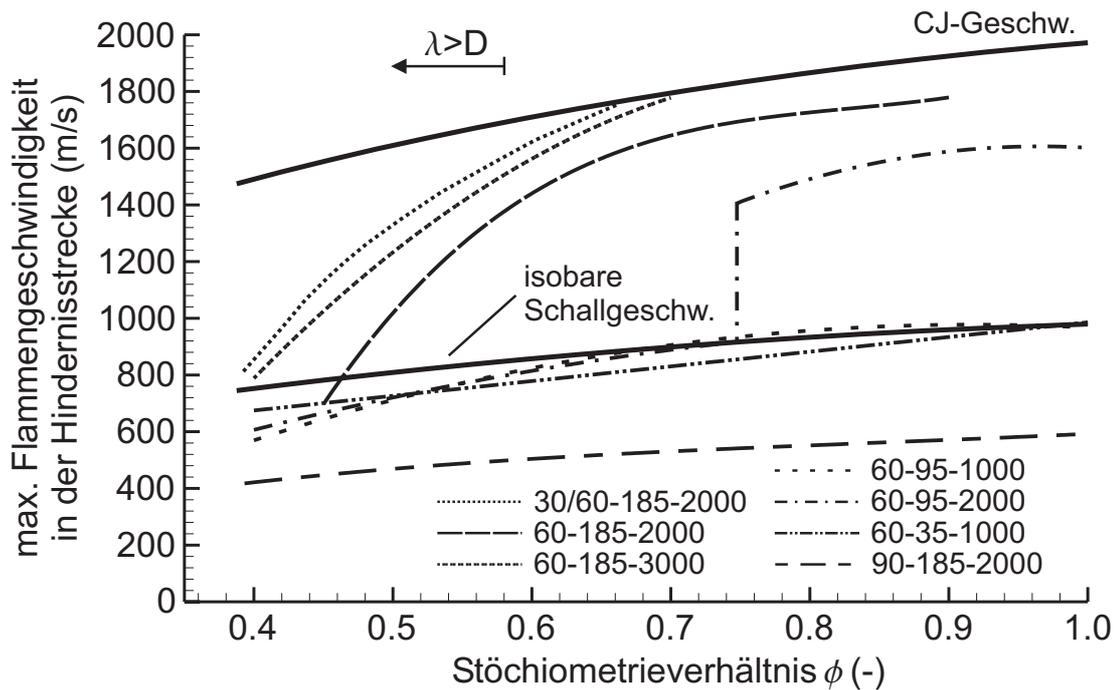


Abbildung 5.2: Maximale Geschwindigkeit in der Hindernisstrecke für sieben verschiedene Hinderniskonfigurationen. Notation der Hindernisbezeichnung siehe Kapitel 3.

nen bereits bei wesentlich mageren Gemischzusammensetzungen auftreten können. Besonders auffällig ist dabei, dass die Quasidetonationen selbst in den Fällen auftreten, in denen der Rohrdurchmesser kleiner als die der Gemischzusammensetzung entsprechenden Detonationszellweite ist. Ein ähnliches Verhalten wurde auch von Chao et al. [CKL99] in einem quadratischen Explosionsrohr mit 30 cm Kantenlänge und periodisch angeordneten, stabförmigen Hindernissen bei Methan-Luft Gemischen beobachtet. Eine Interpretation dieses Verbrennungsphänomens gestaltet sich sehr schwierig, da optische Messungen in diesem Rohrabschnitt nicht realisierbar waren. Es lässt sich jedoch feststellen, dass die Ausbreitung schallnaher Deflagrationen und Quasidetonationen sehr stark von der geometrischen Hindernisanordnung abhängt. Anzunehmen ist, dass in diesem Regime der Reibungsverlust durch die periodischen Hindernisse infolge des großen Hindernisabstands deutlich abnimmt. Durch die Hindernisse hingegen wird zusammen mit der vergleichsweise kleinen Rohrdimension ein System starker Transversalwellen aufrechterhalten, das zu einer direkten Zündung des Wasserstoff-Luft Gemisches hinter der Stoßfront führen kann. Dies lässt

den Schluss zu, dass die hohe Flammenausbreitungsgeschwindigkeit als eine Überlagerung von deflagrativer und stoßinduzierter Flammenausbreitung interpretiert werden kann.

Eine Ausnahme bildet dabei die Hinderniskonfiguration mit Blenden der Blockierrate $BR = 90\%$, bei der lediglich 50% der isobaren Schallgeschwindigkeit erreicht werden. In diesem Fall propagiert die Flamme, wie bereits eingehend in Kapitel 2 beschrieben, in einem Modus aus wechselseitigem Verlöschen der Flamme infolge hochturbulenter Scherschichten sowie anschließender simultaner Zündung des Gemischvolumens zwischen zwei Blenden.

Die höchsten Flammengeschwindigkeiten in der Hindernisstrecke wurden mit einer Hindernisanordnung bestehend aus Blenden der Blockierrate 30 und 60% , die abwechselnd angeordnet waren, erreicht. Dieses Erkenntnis stützt die oben beschriebene Erklärung, da die Reibungsverluste durch die Querschnittsverkleinerung der Rohrverblockung in diesem Fall noch weiter gesenkt werden, die Verblockung des Rohres durch die Hindernisse aber noch ausreicht, um durch Beugung und Reflektion der führenden Stoßwelle starke Transversalwellen zu generieren.

Unterstützt wurde die schnelle Flammenausbreitung innerhalb der Hindernisstrecke auch anlagenbedingt durch drei M6-Gewindestangen, die zur Befestigung der Hindernisblenden erforderlich waren (vgl. Kapitel 3). Gerade bei dem hier vorliegenden kleinen Rohrquerschnitt ist dieser Effekt – der im Rahmen dieser Arbeit nicht singulär untersucht wurde – nicht vernachlässigbar und begünstigt sowohl die Beschleunigung der deflagrativen Flammen durch erhöhten Turbulenzeintrag in die Strömung als auch die stoßinduzierten Zündvorgänge, da an diesen erzeugte Scherschichten als Zündkeime zur Auslösung lokaler Mikroexplosionen dienen können.

Die Flammengeschwindigkeiten in der Hindernisstrecke bei großem Hindernisabstand lassen sich ebenso nicht mit dem D^* -Kriterium (siehe Seite 51) erfassen. Abbildung 5.3 zeigt Werte für D^* für vier unterschiedliche Hinderniskonfigurationen. Zusätzlich ist das weit verbreitete und als konservativ angesehene Kriterium $d > \lambda$ für jede Hinderniskonfiguration eingezeichnet. Es ist deutlich zu erkennen, dass Konfigurationen mit kleinen Werten von D^* nicht zur Quasidetonation geführt haben, da entweder der Hindernis-

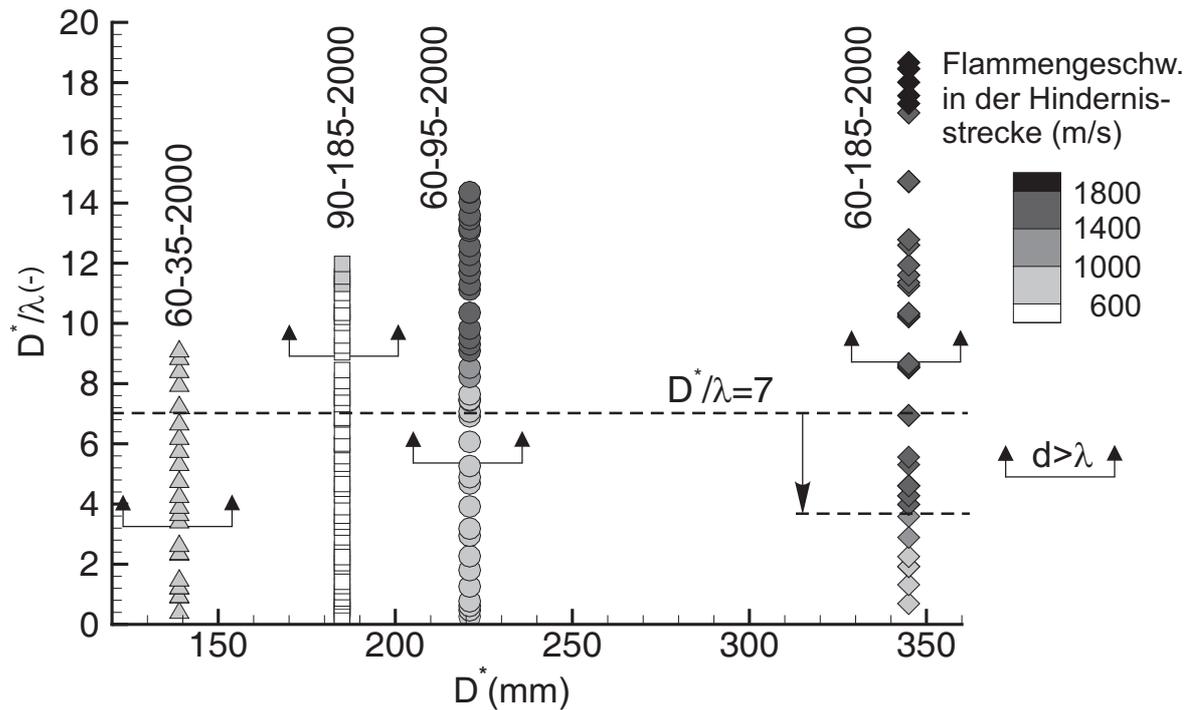


Abbildung 5.3: D^* -Kriterium für ausgewählte verwendete Hinderniskonfigurationen. Notation der Hindernisbezeichnung siehe Versuchsmatrix in Kapitel 3.

abstand zu klein bzw. die Blockierrate zu groß war. Das von Kuznetsov et al. [KAD99] eingeführte Kriterium konnte deshalb nur für Hinderniskonfigurationen bestätigt werden, in dem der Hindernisabstand vergleichbar zum Rohrdurchmesser war, wie exemplarisch anhand der Hinderniskonfiguration “60-95-2000” gezeigt. Für Hinderniskonfigurationen mit großem Hindernisabstand liegt der charakteristische Wert für das Auftreten von Quasidetonationen deutlich tiefer und wurde für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Konfigurationen mit einem Wert von $D^* = 3$ bis 4 mm berechnet.

5.1.2 Brennregime induziert durch periodische Hindernisse

Die physikalischen Vorgänge am Ort des Übergangs von mit periodischen Hindernissen versehenen Rohrabschnitten in ein unblockiertes Rohr sind von entscheidender Bedeutung für den weiteren Verlauf der Flammenausbreitung. Charakteristische Parameter dabei sind die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Stoß-Flamme Systems, der Abstand zwischen Stoßwelle

und Flamme sowie das vorherrschende Brennregime am Ende der Hindernisstrecke. Besonderes Interesse gilt dabei auch der Frage, unter welchen Voraussetzungen in einem runden Rohr eine Marginal-Detonation entstehen kann. Ausgehend von einer phänomenologischen Beschreibung von typischen Verbrennungsabläufen werden diese Phänomene in der Folge im Detail weiter erläutert.

Abbildung 5.4 zeigt exemplarisch Verläufe der Flammenausbreitungsgeschwindigkeit über der Rohrlänge für verschiedene Hinderniskonfigurationen zur Beschleunigung der Flamme.

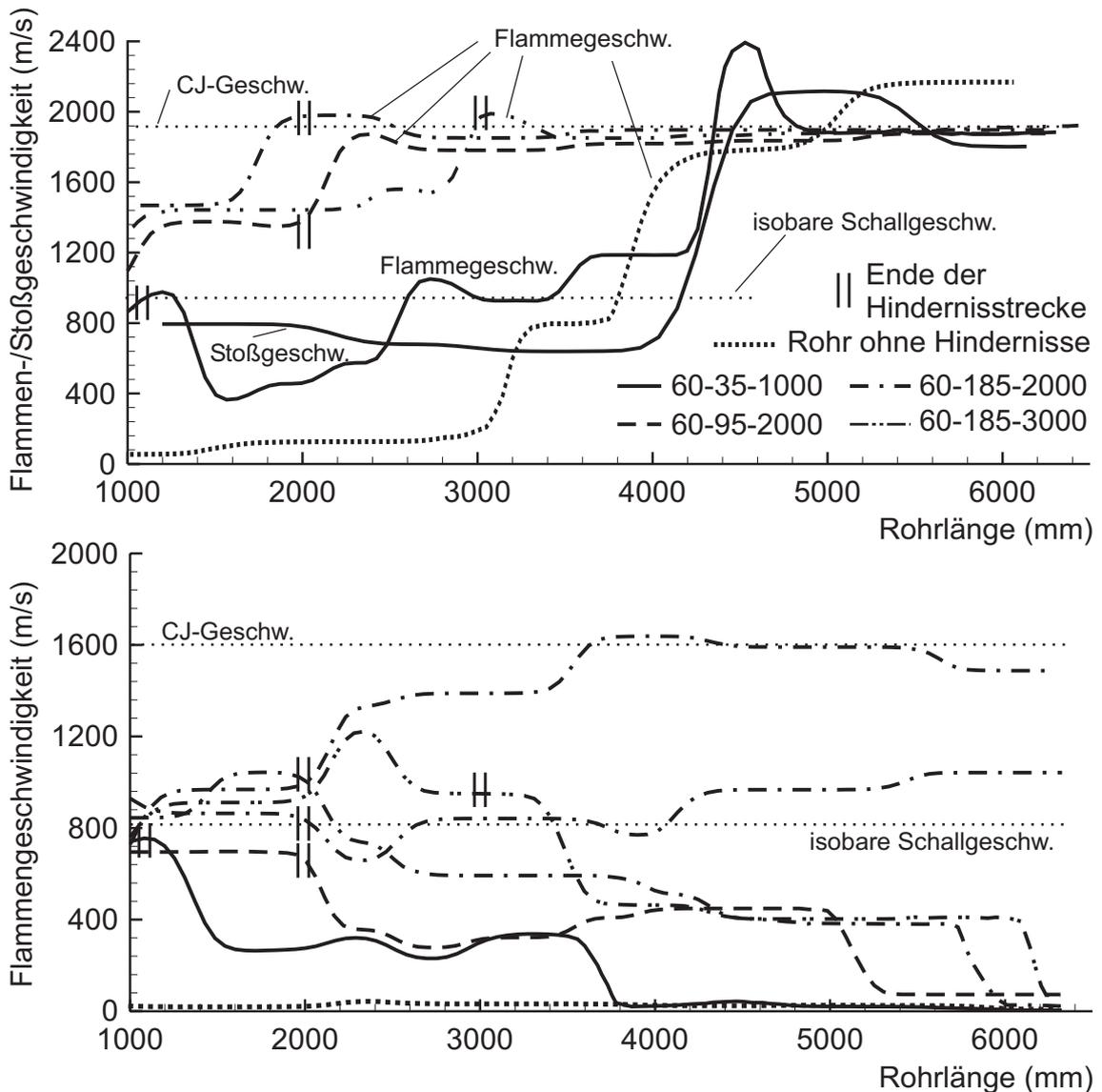


Abbildung 5.4: Verlauf der Flammengeschwindigkeit über der Rohrlänge für verschiedene Hinderniskonfigurationen zur Beschleunigung der Flamme. Oben: $\phi = 0.75$, unten $\phi = 0.5$.

schwindigkeiten über der Rohrlänge für $\phi = 0.75$ (oben) und $\phi = 0.5$ (unten) nach einer Beschleunigung durch verschiedene Hinderniskonfigurationen im Vergleich zu den jeweiligen Verläufen der Flammenausbreitungsgeschwindigkeit im Rohr ohne Hindernisse. Wird die Flamme nicht mit Hindernissen beschleunigt, so breitet sie sich in brennstoffarmen Gemischen nur mit einer maximalen Geschwindigkeit von ca. 50 m/s aus, wie im unteren Teil der Abbildung 5.4 für $\phi = 0.5$ exemplarisch dargestellt. Bei dem Verlauf der Flammenausbreitungsgeschwindigkeit für das Gemisch mit $\phi = 0.75$ sind zwei Geschwindigkeitssprünge erkennbar: Bei einer Rohrlänge von $x \approx 3000$ mm springt die Geschwindigkeit auf eine Geschwindigkeit in Höhe der isobaren Schallgeschwindigkeit und bei $x \approx 4000$ mm erfolgt der Übergang in die Detonation. Dieses Ausbreitungsverhalten wird gesondert in Abschnitt 5.1.4 behandelt.

Wird die Flamme mit einer Hindernisstrecke beschleunigt, so erreichen alle Flammen in der Hindernisstrecke (sofern diese mindestens 2 m lang ist) bei der Gemischzusammensetzung $\phi = 0.75$ (Abbildung 5.4 oben) das Regime der Quasidetonation und gehen unmittelbar nach dem letzten Hindernis in das Regime einer stabilen CJ-Detonation über, wobei die sich einstellende mittlere Ausbreitungsgeschwindigkeit der Detonationswelle nur unwesentlich von der mit dem eindimensionalen CJ-Modell berechneten Geschwindigkeit abweicht. Erreicht eine Flamme innerhalb der verwendeten Hindernisstrecke lediglich Geschwindigkeiten in Höhe der isobaren Schallgeschwindigkeit, so besteht – wie für die Hinderniskonfiguration “60-35-1000” dargestellt – die Möglichkeit, dass die Flamme nach dem letzten Hindernis kurzzeitig langsamer wird, bevor sie wieder beschleunigt und bei einer Ausbreitungsgeschwindigkeit in Höhe der isobaren Schallgeschwindigkeit sprunghaft in eine Detonation übergeht. Nahezu allen CJ-Detonationen geht eine kurze Phase im Regime der überkomprimierten Detonation voraus, wobei die Geschwindigkeit in der überkomprimierten Phase umso größer ist, je kleiner die Geschwindigkeit in dem Zustand vor dem DDT-Prozess war. Wie bereits eingehend in Kapitel 2 beschrieben, ist der überkomprimierte Zustand instabil und die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Detonation fällt auf die CJ-Geschwindigkeit ab. Im Falle des Übergangs von der Quasidetonation in die CJ-Detonation kann die Phase der überkomprimierten Detonation vernachlässigt werden.

Wesentlich komplexer hingegen ist der Verlauf der Flammengeschwindigkeiten im Bereich der Detonationsgrenzen, wie im unteren Teil der Abbildung 5.4 für ein Wasserstoff-Luft Gemisch mit einem Stöchiometrieverhältnis von $\phi = 0.5$ dargestellt. Für den Fall der Beschleunigung der Flamme mit einem kleineren Hindernisabstand (“60-35-1000” und “60-95-2000” in Abbildung 5.4) verlangsamt die Flamme unmittelbar nach den Hindernissen und breitet sich mit einer Ausbreitungsgeschwindigkeit von ca. 350 m/s aus. Beide gezeigten Deflagrationen verlangsamen nach einer Ausbreitungsstrecke von 4 bzw. 5 m auf eine Geschwindigkeit von lediglich 50 m/s. Der Grund dafür liegt darin, dass die Geschwindigkeit der Stoßwelle, die sich am Hindernisaustritt noch mit der gleichen Geschwindigkeit wie die Flamme ausgebreitet hat, wesentlich schwächer abnimmt und somit das Rohrende deutlich eher erreicht als die Flammenfront. Der reflektierte Druckstoß trifft auf die Flamme und die dadurch induzierte, hohe Strömungsgeschwindigkeit entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Flamme führt dazu, dass die Expansionsströmung vor der Flamme – und somit auch ihre Ausbreitungsgeschwindigkeit – in diesen Fällen nahezu eliminiert wird.

Liegen die Ausbreitungsgeschwindigkeiten in der Hindernisstrecke im Mittel über der isobaren Schallgeschwindigkeit, so können sich mehrere Brennregime im unblockierten Rohrabschnitt einstellen, wie exemplarisch für die Hinderniskonfiguration “60-185-2000” dargestellt. Bei gleichen Gemischzusammensetzungen besteht die Möglichkeit, dass die Flamme nach den Hindernissen langsamer wird und sich als Deflagration weiter mit einer Geschwindigkeit von ca. 500 m/s ausbreitet, bis auch hier die Gegenströmung hinter der reflektierten Druckwelle die Flamme an ihrer weiteren Ausbreitung hindert. Ebenso ist es aber auch möglich, dass die Flamme unmittelbar nach den Hindernissen in das Detonationsregime übergeht. Eine dritte Möglichkeit besteht darin, dass die Flamme annähernd die Geschwindigkeit wie in der Hindernisstrecke beibehält und sich als schnelle Deflagration bis zum Rohrende hin ausbreitet. Dieses Verhalten wurde jedoch nicht beobachtet, wenn die Länge der Hindernisstrecke 3 m betrug. In diesem Fall wurde nur der Übergang in die Deflagration beobachtet.

Die An- und Entkopplungsvorgänge zwischen Stoßwelle und Flammenfront sind in Abbildungen 5.5 bis 5.7 dargestellt. Abbildung 5.5 zeigt anhand

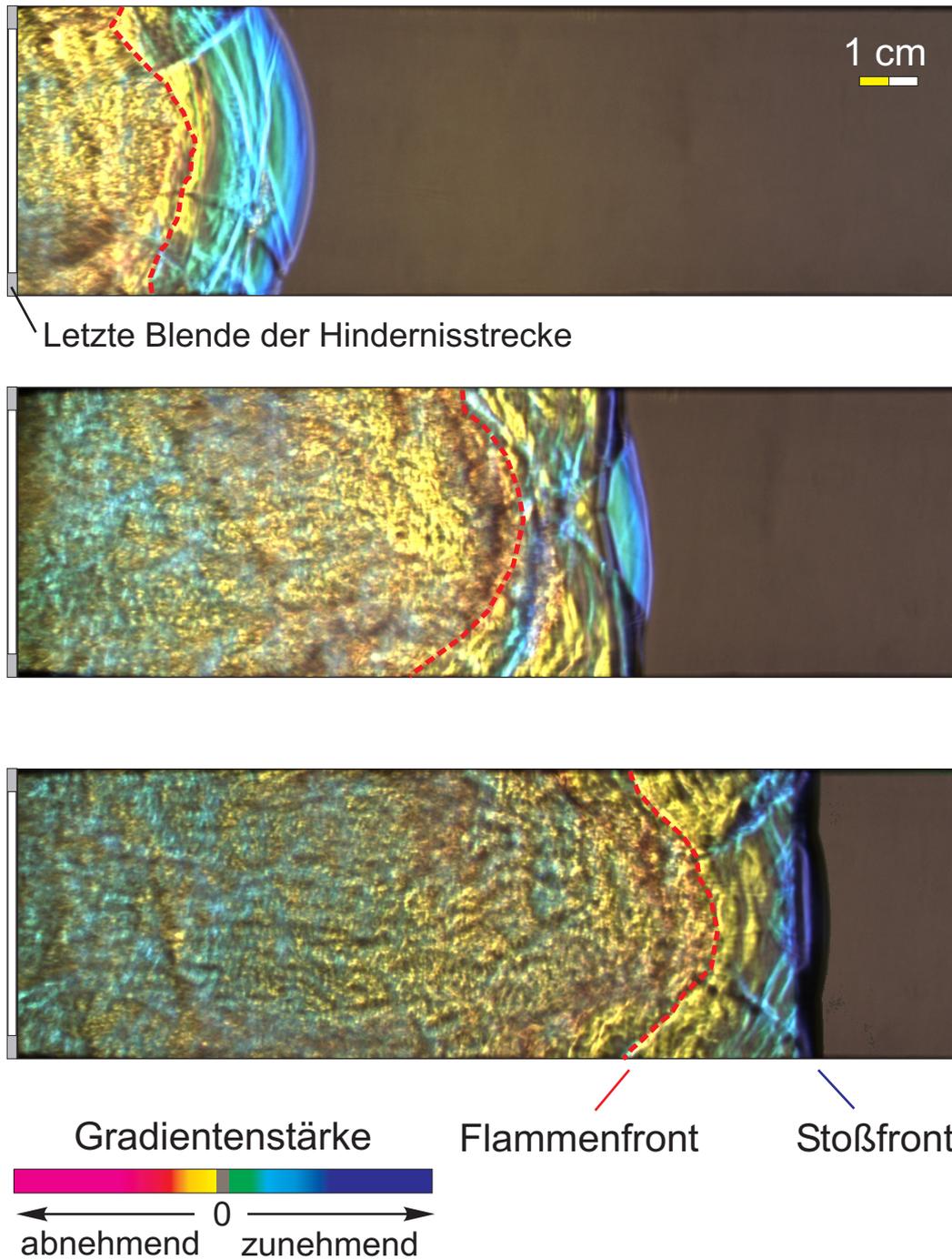


Abbildung 5.5: Deflagrative Flammenausbreitung am Übergang von der Hindernisstrecke in das unblockierte Rohr (Hinderniskonfiguration: “60-185-3000”). Integraler Dichtegradient visualisiert mittels Farbschlierenphotographie, $\phi = 0.42$, $u_F = 800$ m/s.

von drei Momentaufnahmen den zeitlichen Verlauf der mittels der Farbschlierenphotographie bestimmten Dichtegradientenverteilung einer deflagrativen Flammenfront, die nach der letzten Blende der Hindernisstrecke in das unblockierte Rohr übertritt. Die Stoßfront weist aufgrund von Beugungseffekten an der letzten Blende (BR=60%) eine große Krümmung auf. Die relativ großen blaugefärbten Bereiche entstehen durch die integrale Abbildung der dreidimensionalen, parabolische Form der Stoßwelle. Unmittelbar hinter der Stoßfront nimmt die Dichte, wie an der gelben Färbung zu erkennen ist, stetig ab. Die Erwärmung in der Reaktionszone senkt die Dichte des Fluids weiter, wodurch die Flammenfront an der Rotfärbung im Farbschlierenbild erkennbar ist. Infolge der im Verhältnis größeren Absenkung der Temperatur im Vergleich zu dem Druck steigt die Dichte hinter der Reaktionsfront wieder an, wodurch sich eine Blaufärbung bei der Farbschlierenmessung ergibt.

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flammenfront sowie der Stoßfront beträgt $u_F \approx 800$ m/s. Die Flamme behält unmittelbar nach der Hindernisstrecke einen konstanten Abstand von 2-3 cm zu der Stoßfront bei, bevor – wie aus den Messschrieben der Photodioden und Druckaufnehmer bestimmbar ist – die Flamme sprunghaft auf eine Ausbreitungsgeschwindigkeit von $u_F \approx 450$ m/s abfällt und somit den Abstand zu der Stoßfront, deren Geschwindigkeit bis zum Rohrende stetig auf 650 m/s abfällt, kontinuierlich vergrößert.

Abbildung 5.6 zeigt den Übergang einer Quasidetonation in eine CJ-Detonation nach der Hindernisstrecke. Aufgrund des Reibungsverlustes in der Hindernisstrecke liegt die Ausbreitungsgeschwindigkeit am Hindernisaustritt um ca. 100 m/s unterhalb der CJ-Geschwindigkeit (1770 m/s). Dadurch beträgt die Induktionslänge laut Berechnungen mit dem ZND-Code ca. 7 mm, was auch deutlich in den oberen drei Momentaufnahmen ersichtlich ist. In der dritten Momentaufnahme bildet sich eine erste Transversalwelle aus, wodurch das Gemisch hinter dem Machstamm direkt, d.h. ohne erkennbare Induktionslänge reagiert. In der vierten Momentaufnahme hat die Detonationsfront bereits auf ihre entsprechende CJ-Ausbreitungsgeschwindigkeit beschleunigt, bei welcher die Induktionslänge nach dem ZND-Berechnungsmodell 0.04 mm beträgt, ein Abstand der mit der integral messenden Methode der Farbschlierenphotographie örtlich

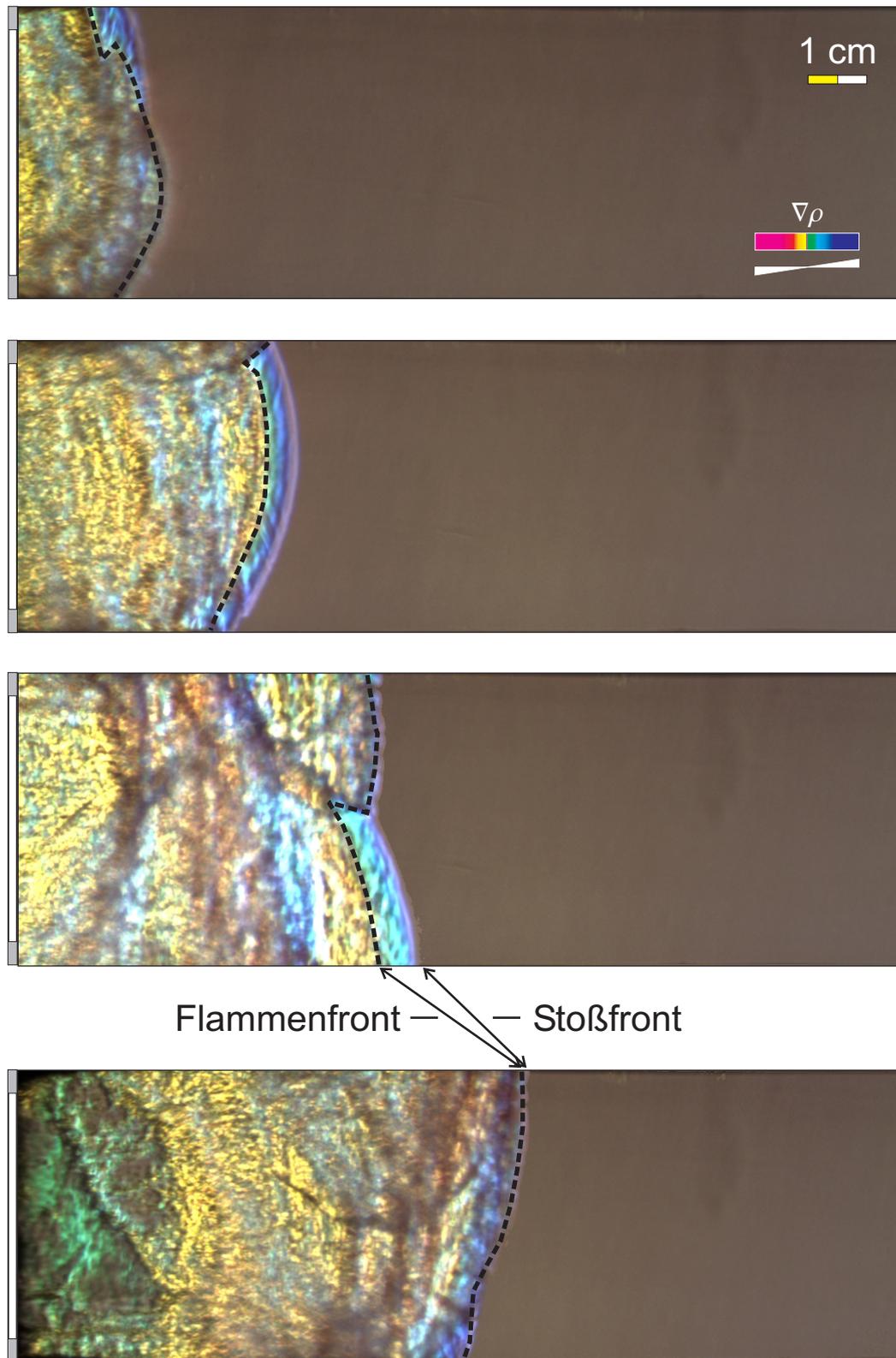


Abbildung 5.6: Übergang einer Quasidetonation in eine CJ-Detonation nach der Hindernisstrecke “60-185-3000”, $\phi = 0.66$, $u_F = 1650$ m/s.

nicht mehr aufgelöst werden kann.

Wie bereits in Abbildung 5.2 dargestellt und oben aufgeführt, wurde bei der Hinderniskonfiguration “60-185-3000” ein Brennverhalten beobachtet, bei dem die Flamme in der Hindernisstrecke mit einer, dem Quasidetonsregime entsprechenden Geschwindigkeit propagiert, jedoch unmittelbar nach der letzten Blende auf eine Ausbreitungsgeschwindigkeit der schnellen Deflagration übergeht und im weiteren Verlauf weiter verlangsamt (vgl. Abbildung 5.4).

Abbildung 5.7 zeigt Momentaufnahmen dieses Übergangs bei einer Gemischzusammensetzung von $\phi = 0.54$. Die Stoß-/Flammenkontur unmittelbar nach dem Hindernis ist vergleichbar zu dem oben beschriebenen Fall des Übergangs von der Quasidetonation in die CJ-Detonation. In beiden Fällen muss, aufgrund des geringen Abstands zwischen Stoßwelle und Flamme sowie der hohen Ausbreitungsgeschwindigkeit, ein stoßinduzierter Reaktionsverlauf vorliegen. Da in dem Rohrabschnitt der optischen Sektion die Ausbreitungsgeschwindigkeiten sowohl der Flammenfront als auch der Stoßwelle langsamer werden, bleiben beide Systeme vorerst stark aneinander gekoppelt. Jedoch erfolgt weder ein Übergang in die Spindetonation (siehe unten) noch in eine planare Detonation aufgrund der Zellweitenlimitierung dieser Gemischzusammensetzung. Vielmehr geht die Flamme von der stoßinduzierten Verbrennung in eine Deflagration über. Durch diese hohe Brenngeschwindigkeit über der isobaren Schallgeschwindigkeit befindet sich die Flamme jedoch in einem überkritischen Zustand, der, wie von Brehm [Bre87] analytisch hergeleitet, nicht stabil ist. Da die Flamme aber keine stabile und selbsterhaltende Zellstruktur aufbauen kann, versucht sie, durch Bildungen von Druckwellen, welche die Temperatur vor der Front erhöhen, wieder in einen stabilen Zustand zu kommen. Die Momentaufnahmen 3 und 4 von Abbildung 5.7 zeigen die Entstehung einer derartigen Druckwelle (erkennbar an der blauen Linie innerhalb der gelb/rot gefärbten Reaktionszone). Diese Druckwelle bewegt sich auf die führende Stoßwelle zu. Treffen auf diese Weise generierte Druckwellen auf den der Flamme voranlaufenden Verdichtungsstoß auf, führen sie diesem Energie zu, wodurch die Stoßwelle stärker als die Flammenfront durch den geänderten thermodynamischen Zustand beschleunigt. Dadurch entkoppelt sich die Flammenfront von der Stoßfront und ihr Abstand vergrößert

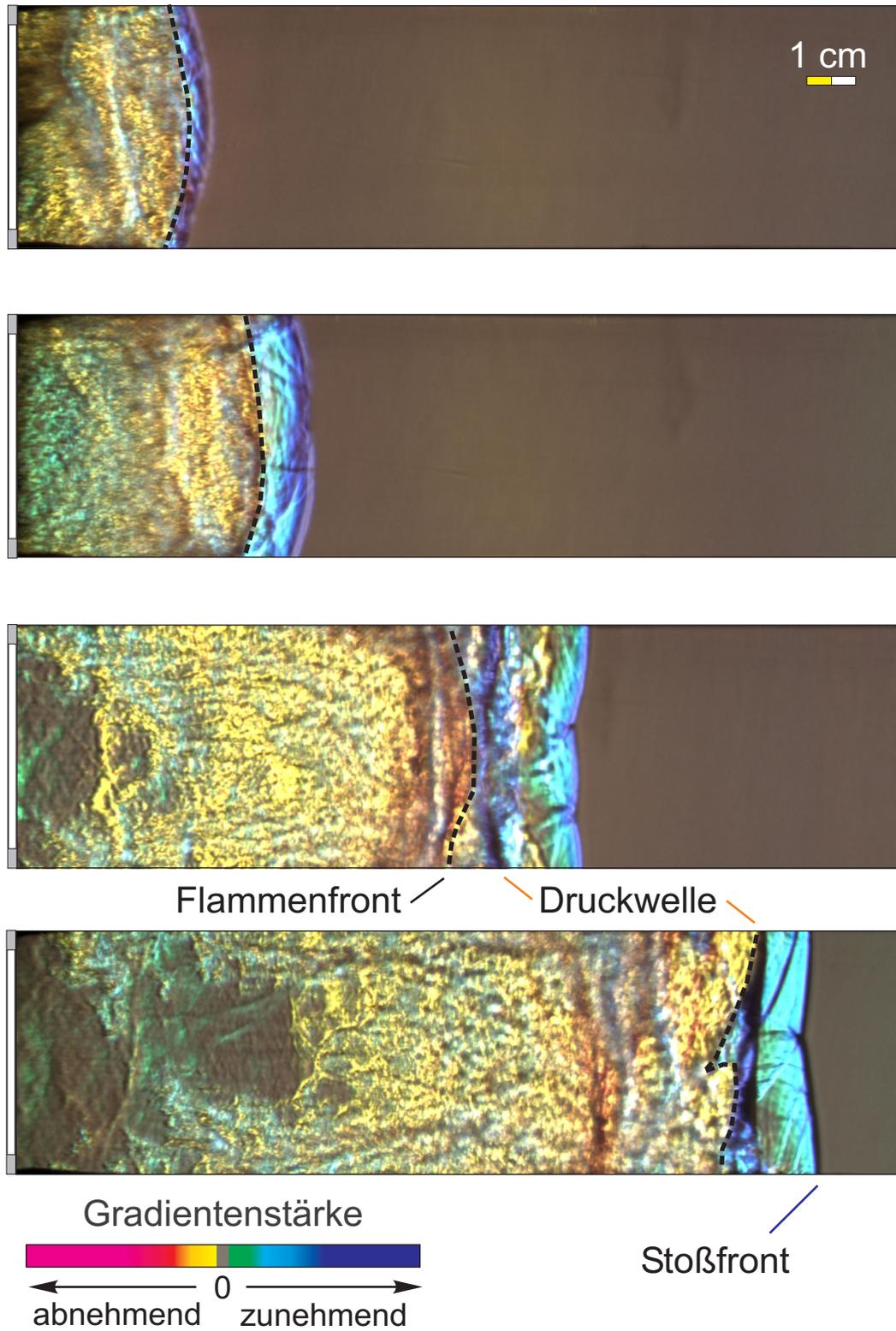


Abbildung 5.7: Übergang einer Quasidetonation in eine Deflagration nach der Hinder-
nisstrecke “60-185-3000”, $\phi = 0.54$.

sich.

Wie in Abbildung 5.8 dargestellt, kann die Entstehung einer derartigen Druckwelle Auslöser für den Übergang einer deflagrativen Flamme in die Detonation sein. Durch eine 1 m lange Hindernisstrecke beschleunigt das Stoß-/Flamme-System bis zur Rohrmitte (optische Sektion) auf eine Geschwindigkeit von $u_F = 1050$ m/s. Auch hier entsteht in der Reaktionszone – nach dem gleichen Mechanismus wie oben beschrieben – eine Druckwelle, an welche die Flamme direkt ankoppelt, siehe Momentaufnahme 4 von Abbildung 5.8. Für diese Gemischzusammensetzung ist das Detonationszellweitenkriterium erfüllt, wodurch an der Druckwelle eine zellulare Struktur entsteht die im weiteren Verlauf als Detonationsfront die führende Stoßwelle überholt.

Wie bereits aus Abbildung 5.4 hervorgeht, wurden Detonationen unterhalb des $D > \lambda$ Kriteriums beobachtet. Das Auftreten dieser Detonation hängt jedoch stark von den verwendeten Hinderniskonfigurationen zur Beschleunigung der Flamme ab. Abbildung 5.9 zeigt die geometrischen Grenzen für das Auftreten von Detonationen in Abhängigkeit der verwendeten Hinderniskonfiguration. Für unterstöchiometrische Wasserstoff-Luft Gemische zeichnet sich eine klare Abgrenzung ab: Es gilt generell das Kriterium, dass DDT Prozesse in dem Explosionsrohr für alle Konfigurationen bis zu der Grenze $D = \lambda$ auftreten. Jedoch können DDT-Prozesse auch bis hin zu der $D = \lambda/\pi$ Grenze für die einköpfige Spindetonation (siehe Abschnitt 2.3.3) auftreten. Die $D = \lambda$ Grenze wird aber nur für Hinderniskonfigurationen unterschritten, in welchen unter der $D = \lambda$ und somit auch unter der $d = \lambda$ Grenze innerhalb der Hindernisstrecke die isobare Schallgeschwindigkeit überschritten wurde (siehe Abschnitt 5.1.1). In diesen Fällen besteht die Möglichkeit, dass eine Spindetonation – wie in Abbildung 5.10 dargestellt – unmittelbar nach der Hindernisstrecke auftritt. Auffällig dabei ist, dass im Falle einer 3 m langen Hindernisstrecke keine Spindetonationen auftreten. Der Grund dafür könnte darin liegen, dass unmittelbar an das Ende der 3 m langen Hindernisstrecke die optische Sektion anschließt. Deren Rücksprünge führen durch die Querschnittserweiterung bereits zu einem zu großen Druckabfall über der Stoßfront dar. Ebenso weicht der Querschnitt des Rohres an diesem Ort von der Idealform eines runden Rohres ab, die wiederum gerade für die Initiierung einer Spindetonation

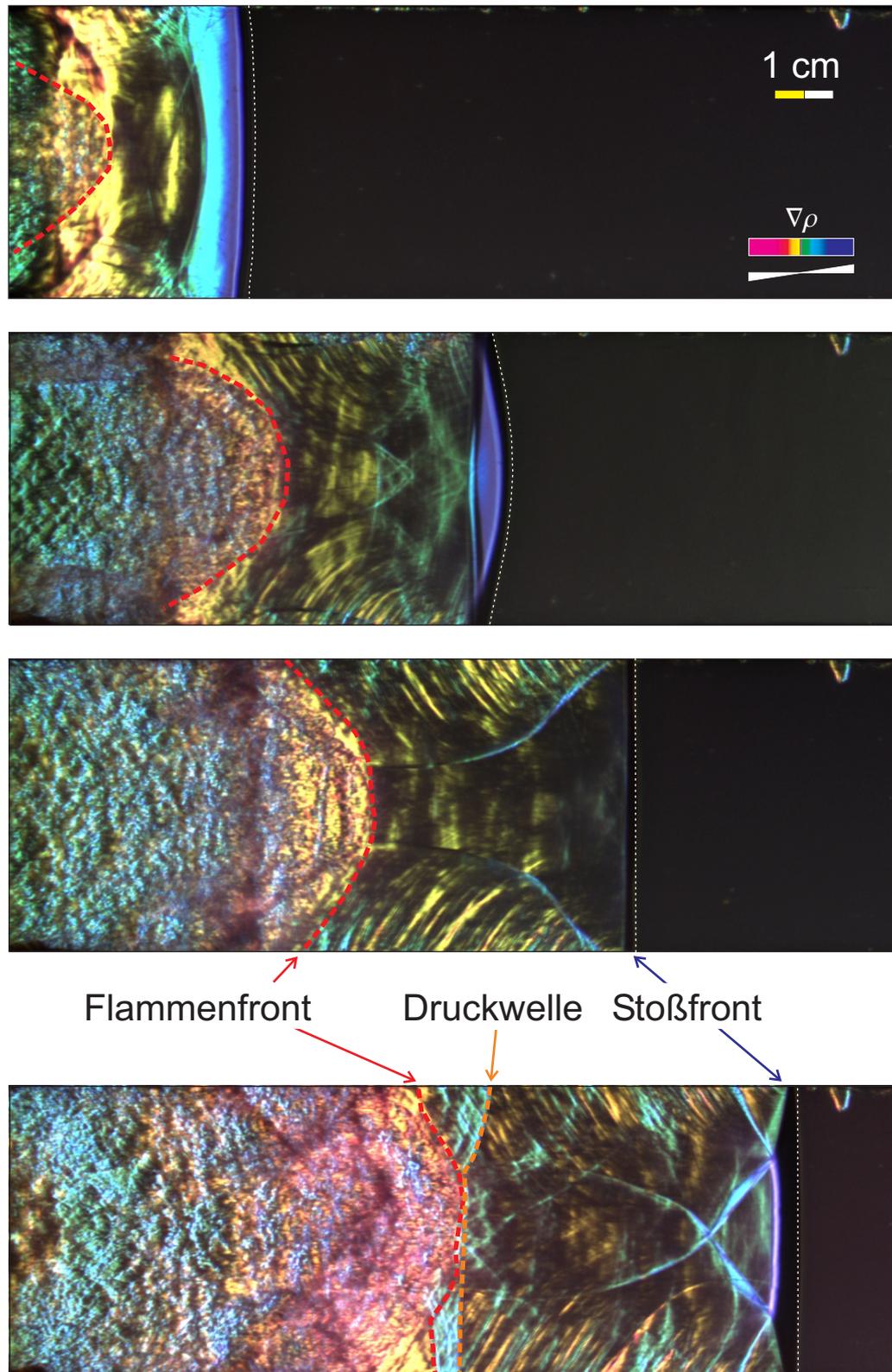


Abbildung 5.8: Übergang einer schnellen Deflagration in eine Detonation an der deflagrativen Flammenfront ca. 2 m nach der Hindernisstrecke “60-300-900”, $\phi = 0.65$, $u_F = 1050$ m/s.

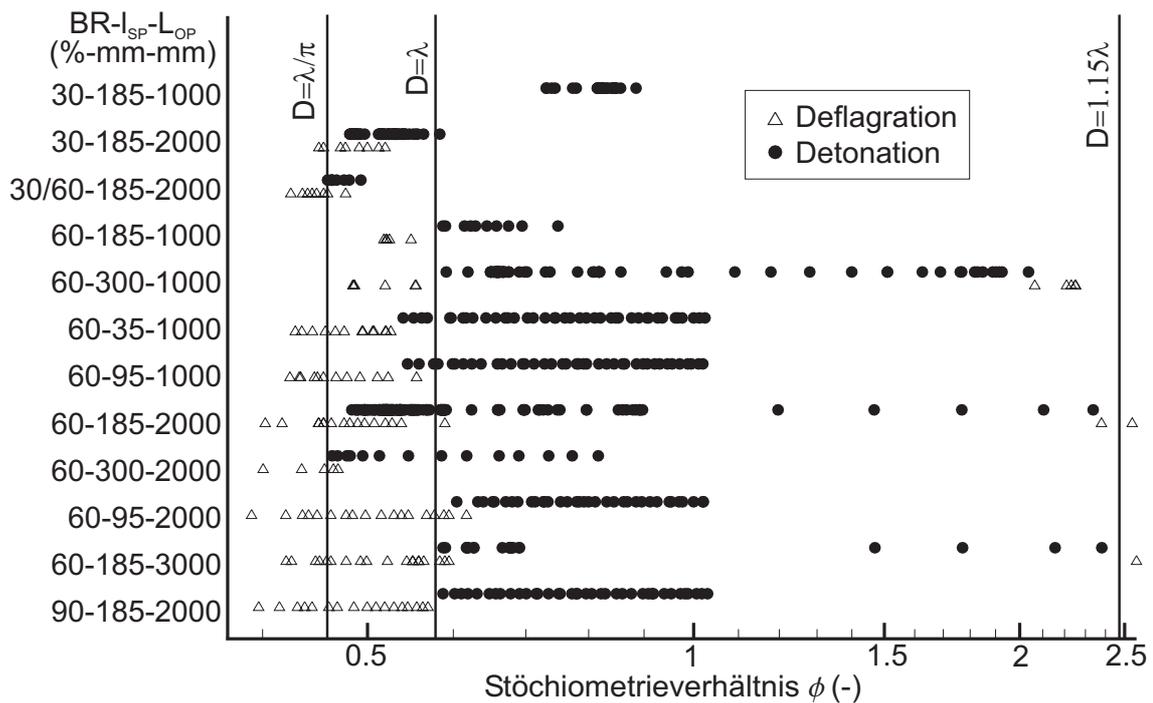


Abbildung 5.9: Geometrische Grenzen für DDT-Prozesse im Explosionsrohr.

zwingend erforderlich ist, siehe Abschnitt 2.3.3.

In der Literatur wird die Möglichkeit einer über einen DDT-Prozess eingeleiteten Spindetonation teilweise kontrovers diskutiert. Im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Versuche traten Spindetonationen wie gezeigt nur unmittelbar hinter der Hindernisstrecke auf. Lee et al. [LKF84] gaben für Messungen an Anlagen mit ähnlichen geometrische Verhältnissen an, dass auch DDT-Prozesse in Abstand von der Hindernisstrecke bis zu der $D = \lambda/\pi$ Grenze auftreten können. Messungen mit den Hindernissen “60-35-1000” und “60-95-1000” gehen auch über die $D = \lambda$ Grenze hinaus und würden, wie auch die Ergebnisse von Lee et al., der oben beschriebenen These widersprechen. Eine genaue Analyse der Versuche von Lee et al. ergibt hingegen, dass sich die führende Stoßwelle im Moment des DDT Prozesses ca. 0.5 m vor der Flammenfront befindet und somit keinen direkten Einfluss auf den DDT-Prozesse hat. Jedoch ändert die Druckwelle den thermodynamischen Zustand des unverbrannten Gemisches vor der Flamme. Messungen der Detonationszellenweite unter leicht erhöhtem Anfangsdruck und -temperatur ($p = 1.5$ bis 3 bar, $T = 373$ K) von Tieszen et al. [TSB⁺86] hingegen zeigten, dass für diesen thermodynamischen

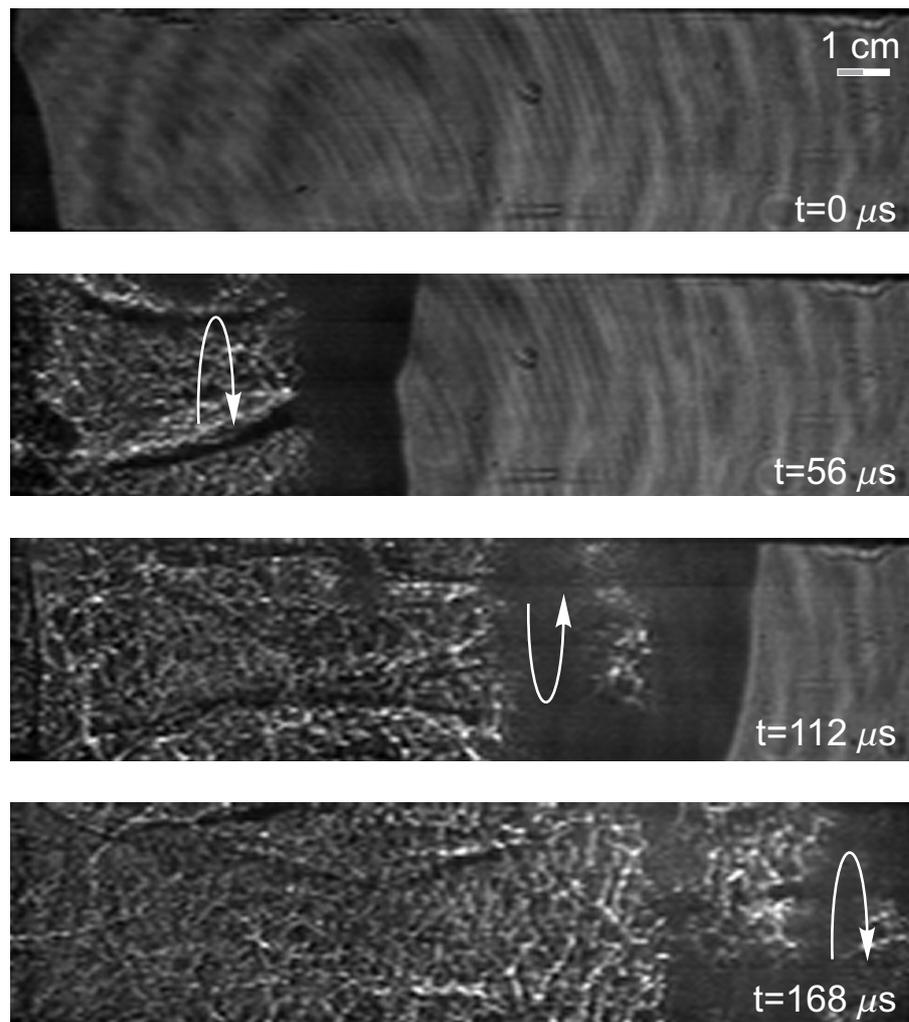


Abbildung 5.10: Hochgeschwindigkeits-Schlierenfotografie einer Spindetonation; Wasserstoff-Luft Gemisch, $\phi = 0.48$, verwendete Hinderniskonfiguration “60-185-2000”.

Zustand die Detonationszellweite eines H_2 -Luft Gemisches der Sensitivität $\phi = 0.52$ von $\lambda \approx 100$ mm für den Umgebungszustand auf einen Wert von $\lambda \approx 60$ mm absinkt, wodurch das im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Kriterium für den Übergang in die Detonation auch hier erfüllt ist. Die bei diesem DDT gebildete Detonationsfront propagiert hinter der führenden Stoßfront und schließt am Rohrende zu ihr auf. Dieser Vorgang zeigt jedoch auch, dass die Anwendung von Kriterien, die auf Detonationszellweite bezogen werden, im Rahmen der Sicherheitsforschung mit großer Sorgfalt erfolgen muss, um die Detonationsfähigkeit eines Gemisches nicht zu unterschätzen.

Neben den geometrischen DDT-Grenzen stellt sich häufig die Frage nach der kritischen Flammengeschwindigkeit, ab welcher ein DDT-Prozess eintreten kann. Abbildung 5.11 zeigt die Abhängigkeit des Übergangs einer deflagrativen Verbrennung in eine Detonation unmittelbar nach dem letzten Hindernis von der maximalen Flammengeschwindigkeit in der Hindernisstrecke. Das Erreichen der isobaren Schallgeschwindigkeit ist, wie aus Abbildung 5.11 erkennbar, eine notwendige Voraussetzung für die Auslösung eines DDT-Prozesses. Jedoch, wie anhand von Abbildung 5.4 (Seite 85) bereits dargelegt, stellt dies keine hinreichende Bedingung dar. Der Grund dafür liegt in dem Abstand zwischen Stoßwelle und Flammenfront am Hindernisaustritt. Befindet sich die Flammenfront unmittelbar hinter der Stoßwelle (d.h., es liegt bereits ein quasi-stoßinduzierter Verbrennungsprozess vor), so erfolgt mit großer Wahrscheinlichkeit ein Übergang in die Detonation an der Stoßfront. Liegt jedoch ein endliche großer Abstand zwischen Druckwelle und Flamme vor (z.B. beträgt der Abstand zwischen Stoßwelle und Flamme in Abbildung 5.4 im Fall "60-35-1000", $\phi = 0.75$ 10 cm am Hindernisaustritt), so muss der DDT-Prozess

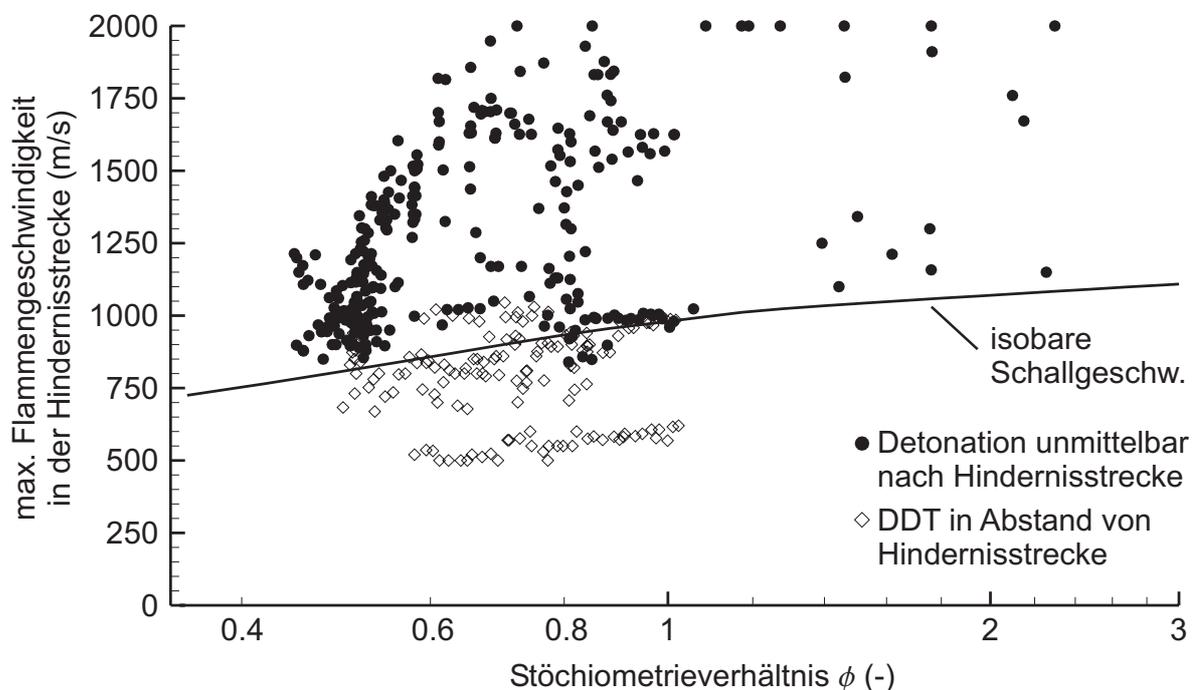


Abbildung 5.11: DDT-Prozesse unmittelbar nach und in Abstand von der Hindernisstrecke in Abhängigkeit der maximalen Flammengeschwindigkeit in der Hindernisstrecke.

an der Flammenfront bzw. zwischen Stoßwelle und Flammenfront erfolgen, was jedoch aufgrund der zu hohen Zündverzugszeit in dem vorkonditionierten Gemisch hinter der sich relativ langsam bewegenden Stoßfront nicht möglich ist. Vielmehr nimmt die Turbulenzenergie in der Strömung vor der Flamme schlagartig durch den Wegfall der Hindernisse ab, wodurch die Flamme diese hohe Ausbreitungsgeschwindigkeit nicht weiter aufrechterhalten kann, unmittelbar nach den Hindernissen langsamer wird und somit den Abstand zu der Stoßwelle, die lediglich aufgrund von Reibungsverlusten kontinuierlich langsamer wird (vgl. Abbildung 5.4), vergrößert. Die Flammenfront beginnt anschließend erneut aufgrund fluiddynamischer Rückkopplungseffekte zu beschleunigen, wobei jedoch die Strömungsgeschwindigkeit vor der Flamme durch den großen Abstand zur Stoßwelle deutlich geringer ist. Durch die Flammenbeschleunigung nimmt auch die Strömungsgeschwindigkeit des unverbrannten Gemisches vor der Flamme zu und je mehr sie den Abstand zu der Stoßwelle verringert, desto mehr ist das Gas unmittelbar vor der Flamme vorkonditioniert. Dieser Effekt sowie die Zunahme der Strömungsgeschwindigkeit durch die Annäherung der Flamme an das Nachströmgebiet der Stoßfront lassen die Flamme wieder auf Geschwindigkeiten in Bereich der isobaren Schallgeschwindigkeit ansteigen, wodurch die Flamme auf die Stoßfront auflaufen und in eine Detonation übergehen kann.

Liegt die Gemischzusammensetzung des Wasserstoff-Luft Gemisches in einem Bereich zwischen den geometrischen Grenzen der Spin- sowie der planaren Detonation, so besteht die Möglichkeit, dass die Flamme die Geschwindigkeit bis zum Rohrende nahezu konstant beibehält, d.h. es erfolgt weder ein Geschwindigkeitssprung in die Detonation noch in die bereits oben beschriebene, langsame Deflagration. Die Voraussetzungen für das Entstehen dieser schnellen Deflagrationen sind identisch zu denen der Spindetonation. Um eine statistisch abgesicherte Aussage über die Wahrscheinlichkeiten zu geben, wann welches Verbrennungsphänomen auftritt, wurden alleine in diesem Gemischbereich über 250 Versuche mit der Hinderniskonfiguration "60-185-2000" durchgeführt, bei welcher in der Hindernisstrecke die isobare Schallgeschwindigkeit überschritten wurde. Die Verteilung der Wahrscheinlichkeit für das Auftreten der drei möglichen Verbrennungsregime in diesem Bereich ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Gerade im Bereich um $\phi = 0.5$ beträgt die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten einer schnellen

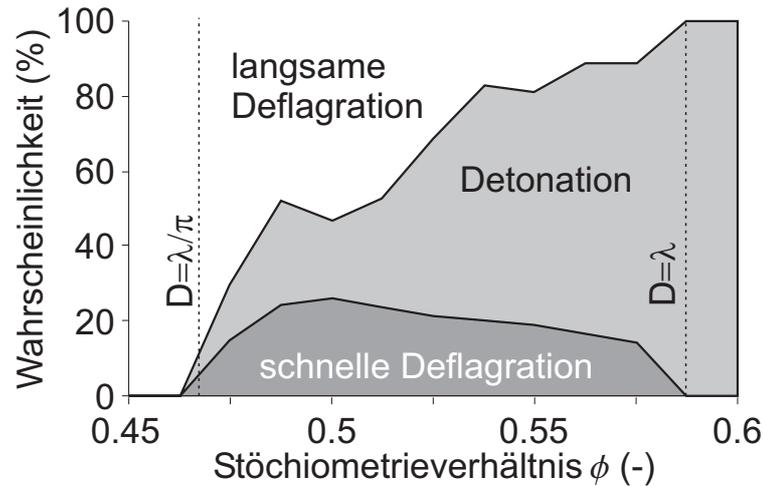


Abbildung 5.12: Verteilung der Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des Verbrennungsregimes der Deflagration, der schallnahen Deflagration und der Detonation im Gemischbereich $\lambda/\pi < D < \lambda$, wenn in der Hindernisstrecke (hier verwendete Konfiguration “60-185-2000”) die isobare Schallgeschwindigkeit überschritten wird.

Deflagration über 20% und ist somit gleich zu der Wahrscheinlichkeit für den Übergang in eine Marginaldetonation. Ist hingegen die Grenze $D = \lambda$ für den Übergang in eine planare Detonation erreicht, so beträgt dafür die Wahrscheinlichkeit 100%.

Wie auch in den Regimes, in denen ein Übergang in die Detonation auftritt, hat auch hier die der Flamme voranlaufende Stoßwelle eine entscheidende Bedeutung für die Ausbreitung dieser schnellen Deflagrationen. Abbildung 5.13 zeigt exemplarisch den Verlauf der Stoßwelle sowie der Flammenfront über der Rohrlänge für eine schnelle Deflagration in einem H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0,46$, beschleunigt mit einer “30-185-2000” Hindernisstrecke. Es ist deutlich erkennbar, dass die Geschwindigkeiten der Stoß- sowie der Flammenfront nur im Mittel konstant sind und vielmehr antizyklisch um einen Mittelwert beschleunigen und wieder verlangsamen, ein Charakteristikum des “Choking-Flame” Regimes [She00]. Die Flammenfront verkürzt dabei den Abstand zu der Stoßwelle und führt ihr Energie durch sekundäre Stoßwellen zu. Durch diese Energiezufuhr beschleunigt die Stoßwelle auf eine Geschwindigkeit, die für die deflagrative Flamme zu hoch ist um der Stoßwelle unmittelbar zu folgen. Die einzige Möglichkeit für die Flamme, diese Geschwindigkeit aufrechterhalten zu können, besteht darin, dass diese

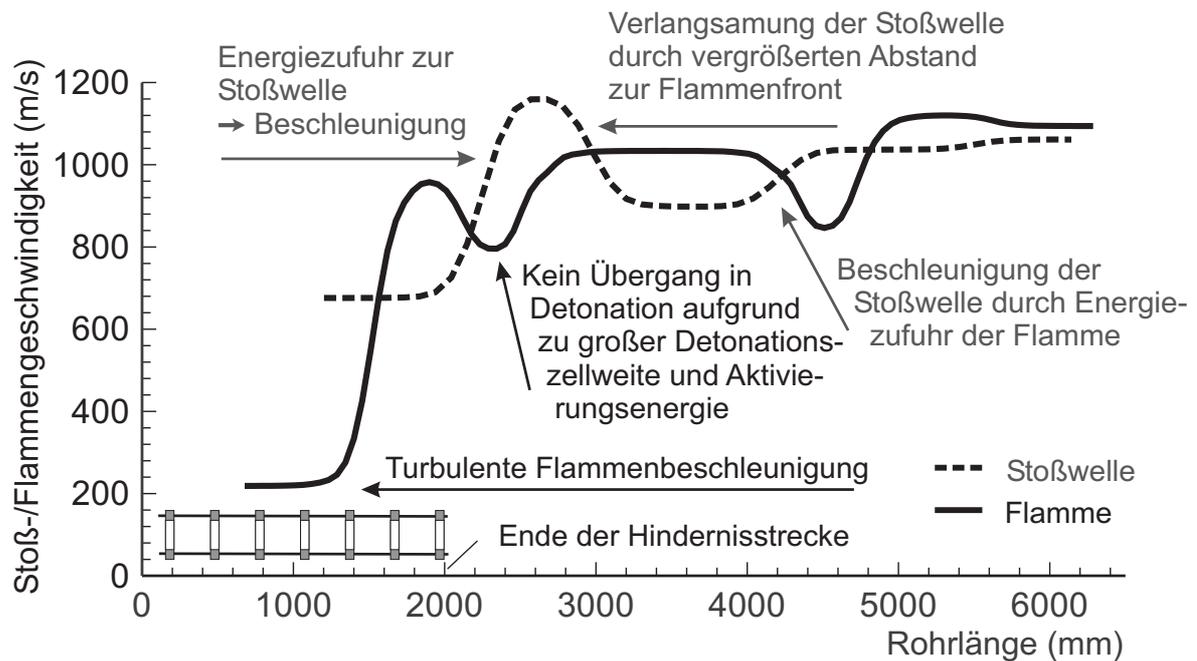


Abbildung 5.13: Verlauf der Geschwindigkeit der Stoßwelle sowie der Flammenfront über der Rohrlänge für eine schnelle Deflagration in einem H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0.46$. Verwendete Hinderniskonfiguration: “60-185-2000”.

Deflagration in eine Spindetonation übergeht. Wie bereits oben beschrieben, wurde dieses Phänomen im unblockierten Rohr jedoch nicht beobachtet, da sich die Flamme dafür unmittelbar hinter der Stoßwelle befinden muss. Ein Übergang an der deflagrativen Flammenfront bzw. zwischen der Stoßfront und der Flammenfront ist aufgrund der hohen Aktivierungsenergien in diesem Gemischbereich (vgl. Abbildung 5.1, Seite 80) bei größeren Abständen zwischen Flamme und Druckwelle (Größenordnung cm) nicht möglich. Aus diesem Grund verlangsamt die Flamme wieder, der Abstand zur Druckwelle nimmt wieder zu und der Zyklus beginnt von neuem.

Der strömungsmechanische sowie der thermodynamische Zustand des unverbrannten Gemisches zwischen der Stoßwelle und der Flammenfront repräsentiert sehr gut die Situation, wie sie auch bei sensitiveren Gemischen kurz vor dem Übergang der Deflagration in eine planare Detonation vorherrscht. Der thermodynamische Zustand kann hinreichend genau durch Kenntnis der Stoßwellengeschwindigkeit abgeschätzt werden, wodurch sich die relevanten Flammenparameter (laminare Flammendicke

und Brenngeschwindigkeit) aus den Korrelationen (2.15) und (2.16) sowie aus den entsprechenden Stoffdaten (berechnet mit auf STANJAN [Rey86] basierenden Routinen) ergeben. Eine Klassifizierung dieser Flammen nach dem Phasendiagramm von Peters [Pet97] erfordert jedoch auch die Bestimmung von strömungsmechanischen Kenngrößen, deren messtechnische Bestimmung, wie in Kapitel 4 dargestellt, nicht möglich war. Um dennoch eine Klassifizierung vorzunehmen, wurden diese Größen wie folgt abgeschätzt: Die voranlaufende Stoßwelle wirbelt Partikel von der Rohrwand auf, deren Bewegung im Rahmen der Hochgeschwindigkeits-Schlierenphotographiemessungen verfolgt werden konnte. Die Geschwindigkeit der Partikel entspricht dabei der Geschwindigkeit des unverbrannten Gemisches vor der Flamme. Die Turbulenzintensität wurde dabei aus dem Turbulenzgrad abgeschätzt, für den ein Wert von 5% angenommen wurde. Dies entspricht Messungen von Beauvais [Bea94] bei Strömungsgeschwindigkeiten von ca. 100 m/s. Das integrale Längenmaß der Strömung wurde mit einem Wert von $0.05D$ bis $0.1D$ angesetzt, was für Rohrströmungen mit hohen Reynoldszahlen eine allgemein verwendete Abschätzung darstellt und auch von Beauvais für Expansionsströmungen von sich schnell ausbreitenden Deflagrationen über einen weiten Gemischbereich experimentell bestätigt wurde. Da in dem Phasendiagramm lediglich Größenordnungen dieser Werte einen Einfluss auf das jeweilige Brennregime haben, stellt diese Approximation eine ausreichende Genauigkeit für die Klassifizierung dar.

Wie in Abbildung 5.14 dargestellt, ergab die Auswertung der Versuche, dass das Brennregime der schnellen Deflagrationen im Grenzbereich zwischen den dünnen und den unterbrochenen Reaktionszonen liegt. Ebenso liegt dieser Bereich an der $Da = 1$ Grenze, die den Bereich der führenden Flammenfront von der volumetrischen Reaktion trennt. Wie in der Folge gezeigt wird, konnte dieses analytische Ergebnis mit Hilfe von laseroptischen Meßmethoden (PLIPF) bestätigt werden.

Aufgrund der identischen Versuchsanlagen liegt es nahe, das von Beauvais gefundene Brenngesetz für das Brennregime von schallnahen, deflagrativen Flammen auf seine Gültigkeit hin zu überprüfen. Wie bereits oben dargestellt, konnten im Rahmen dieser Arbeit die dafür erforderlichen Turbulenzparameter nicht experimentell bestimmt werden. Jedoch wurde

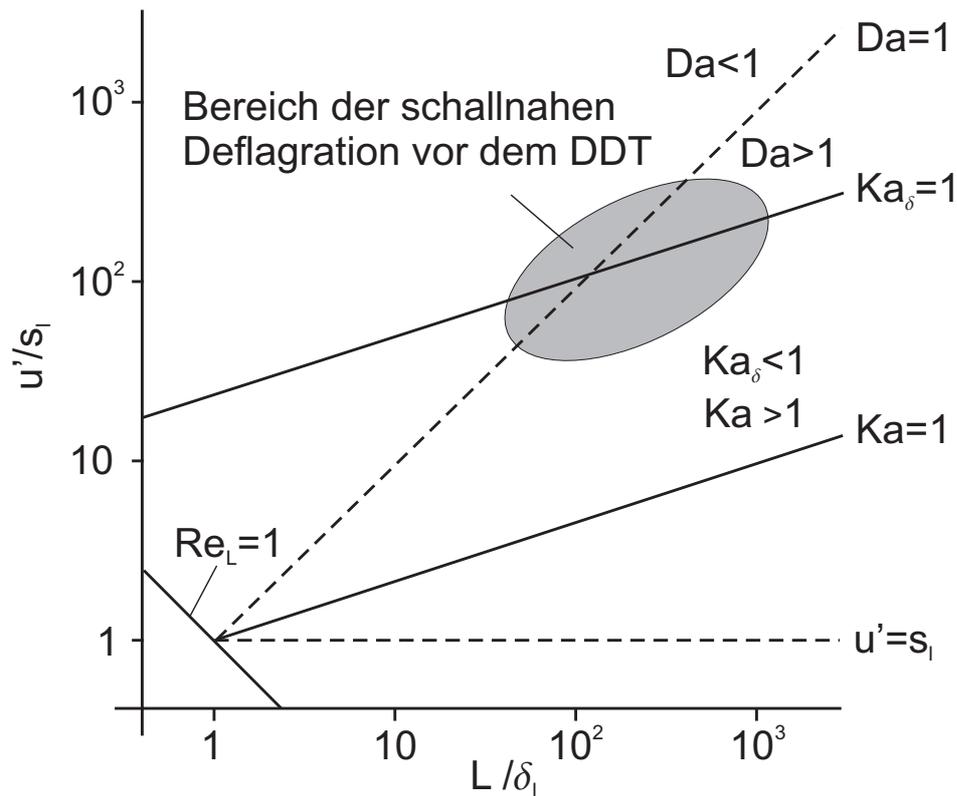


Abbildung 5.14: Klassifizierung der turbulenten Deflagration unmittelbar vor dem DDT im Phasendiagramm nach Peters.

gerade für Gemische an der unteren Detonationsgrenze festgestellt, dass sich im Falle einer Deflagration die Flamme im Mittel mit der identischen Geschwindigkeit wie die vor ihr laufende Stoßwelle ausbreitet. Da hinter der Stoßwelle die Fluidgeschwindigkeit sowie die thermodynamischen Größen analytisch berechnet werden können, ist es möglich, mit den auch für das Borghi-Diagramm getroffenen Annahmen die Gültigkeit des Brenngesetzes für dieses Brennregime zu bestätigen. Tabelle 5.2 zeigt für die in Abbildung 5.13 gezeigte Flammenausbreitung mit einer mittleren Ausbreitungsgeschwindigkeit von 1000 m/s in einem Gemisch von $\phi = 0.46$ zur Berechnung der turbulenten Brenngeschwindigkeit laut Gleichung (2.27) erforderlichen Größen. Mit diesen Werten ergibt sich eine Flammenausbreitungsgeschwindigkeit von $u_F = 950$ m/s, was mit der experimentellen Beobachtung der gleichen Geschwindigkeit von Stoßwelle und Flamme gut übereinstimmt und die Gültigkeit des Brenngesetzes von Beauvais auch in diesem Bereich bestätigt.

Tabelle 5.2: Fluiddynamische und strömungsmechanische Größen zur Bestimmung der Brenngeschwindigkeit hinter einer Stoßwelle (PS=Post Shock).

Stoßgeschwindigkeit:	1000 m/s
Fluidgeschwindigkeit:	722 m/s
integrales Längenmaß [Bea94]:	3.5 mm
rms-Turbulenzintensität u'_{rms} (Tu = 0.1):	72 m/s
Druck p_{PS} hinter Stoß:	8.4 bar
Temperatur T_{PS} hinter Stoß:	673 K
laminare Brenngeschwindigkeit s_l im Normzustand:	1 m/s
laminare Brenngeschwindigkeit $s_l(p_{PS}, T_{PS})$:	4.4 m/s
laminare Flammendicke $\delta_l(p_{PS}, T_{PS}) = \lambda/(\rho c_p s_l) _{PS}$:	3.6 μm
Lewis Zahl Le:	0.36
Löschungsterm (KLe)	1.5

5.1.3 Untersuchung der Flammenstruktur

Die Schlierenaufnahmen und analytischen Untersuchungen im vorangegangenen Kapitel haben gezeigt, dass sowohl bei schnellen Deflagrationen als auch bei Detonationen am Rande der Detonationsgrenzen Brennverhalten beobachtet werden können, die mittels klassischer Theorien nicht eindeutig interpretierbar sind. Von besonderem Interesse war im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen der Bereich der marginalen Detonation. Es ist bekannt, dass sich Detonationen in einem Rohr in Gemischen mit $\lambda = D\pi$ als einköpfige Spindetonation sowie ab $\lambda < D$ als planare Detonation ausbreiten. Die Untersuchung, welche Struktur die Flamme in dem Zwischenbereich einnimmt, wurde deshalb anhand der zweidimensionalen Verteilung der OH-Radikale mit Hilfe der planaren Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz (PLIPF) durchgeführt. Gerade in diesem hochdynamischen Bereich weichen jedoch die Flammenkonturen bei identischen Randbedingungen mitunter stark voneinander ab. Aus diesem Grund wurden über 300 mit PLIPF bestimmten Flammenkonturen für diesen Gemischbereich miteinander verglichen, um eine eindeutige Aussage über die wahrscheinlichsten Flammenkonturen zu ermöglichen und Fehlinterpretationen infolge Messfehler und nicht eindeutigen Schnittbildern der stark dreidimensionalen Kontur zu verhindern.

5.1.3.1 Schallnahe Deflagration

In Abbildung 5.15 ist die OH-Radikalenverteilung von schnell brennenden Deflagrationen dargestellt. Die Gesamtausdehnung der Flammenfront in axialer Richtung beträgt für beide Flammenkonturen ca. 3 cm und ist vergleichbar zu der Ausdehnung der in Abbildung 2.5/B (Seite 17) dargestellten dünnen Reaktionszonen. Obwohl die in Abbildungen 5.15/a und b gezeigten Bilder nahezu identische Gemischzusammensetzungen besitzen, weichen die Ausbreitungsgeschwindigkeiten voneinander ab. Abbildung 5.15/a zeigt eine Deflagration mit einer Geschwindigkeit von 540 m/s, die kontinuierlich langsamer wird, Abbildung 5.15/b hingegen zeigt eine schnelle Deflagration von ca. 850 m/s im Moment der PLIPF-Messung, die bis zum Rohrende auf eine Geschwindigkeit von ca. 1050 m/s beschleunigt.

Bei genauerer Analyse der in Abbildung 5.15 dargestellten Flammenkonturen zeigen sich auch Unterschiede. Die in Abbildung 5.15/a dargestellte Flammenkontur weist eine weitgehend zusammenhängende Flammenkontur auf, wobei deutlich die zelluläre Struktur erkennbar ist. Diese Struktur findet sich auch in der in Abbildung 5.15/b gezeigten Flammenstruktur wieder. Die Bestimmung der absoluten Dicke der Reaktionszone gestaltet sich bei Deflagrationen mit dem Verfahren der planaren Laser-

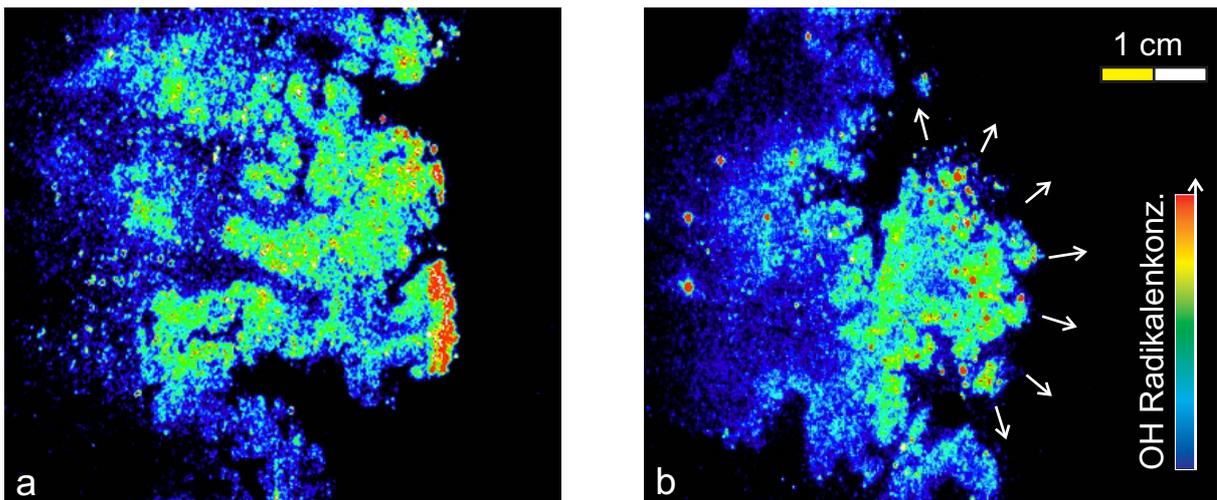


Abbildung 5.15: OH-Radikalenverteilung schallnaher Deflagrationen nach Beschleunigung mit der Hinderniskonfiguration “60-185-2000”, (a) $\phi = 0.49$, $u_F = 540$ m/s, (b) $\phi = 0.51$, $u_F = 850$ m/s.

induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz am OH-Radikal als sehr schwierig, da bei Gleichdruckverbrennungen in diesem Gemischbereich ca. 75% der maximalen OH-Konzentration hinter der eigentlichen Reaktionszone verbleiben. Deutlich erkennbar ist aber dennoch sowohl eine makroskopische als auch mikroskopische Vergrößerung der Reaktionszone zum einen durch große Wirbel, die die gesamte Reaktionszone auffalten und zum anderen durch Wirbel, die kleiner als die laminare Reaktionszone sind und zu lokalen Löscheffekten innerhalb der Flamme führen. Die Oberflächenvergrößerung der Flammenfront führt u.a. zu diesen hohen Ausbreitungsgeschwindigkeiten durch den vergrößerten Energieumsatz pro Zeiteinheit. Charakteristisch für viele Flammenstrukturen schneller („schallnaher“) Deflagrationen ist jedoch auch stets ein Bereich von OH-Radikalen, in welchem keine definierten Flammenstrukturen erkennbar sind (siehe Abbildung 5.15/b). Ein Vergleich mit den von Jordan [Jor99] beobachteten und nachgewiesenen Volumenreaktionen bei Freistrahlzündvorgängen lassen den Schluss zu, dass es sich auch in diesem Fall um eine volumetrische Reaktion handelt. Dies bestätigt auch die in Kapitel 5.1.2 dargelegte Abschätzung, dass das Brennregime der schnellen Deflagrationen sich an der Grenze zu den volumetrischen Reaktionszonen ($Da < 1$) befindet.

5.1.3.2 Detonationen in Gemischen mit $\lambda \geq D$

Im Bereich zwischen den klassischen Grenzen für Detonationen ($\lambda/\pi \leq D \leq \lambda$) treten, wie bereits dargestellt, neben Deflagrationen auch Detonationen auf, deren Ausbreitungsmechanismen mit den Modellen der Spindetonation bzw. der planaren Detonation nicht eindeutig interpretiert werden können. Auch bei Detonationen ist ein großer Anteil des OH-Moleküls hinter der Reaktionszone, wie in Abbildung 2.13 dargestellt, stabil, wodurch auch hier die PLIPF-Messtechnik am OH-Radikal nur bedingt für die Bestimmung der Reaktionszonen geeignet ist. Gerade aber in diesem Gemischbereich treten Effekte hinter der Reaktionszone auf, die von entscheidender Bedeutung für das Ausbreitungsverhalten dieser Marginal-Detonationen sind.

Die einfachste Form der Detonationsausbreitung und zugleich auch die geometrische Detonationsgrenze für runde Rohre stellt die Spindetonation dar. Abbildung 5.16 zeigt die OH-Radikalenverteilung einer einköpfigen Spindetonation, deren Reaktionsfront um die Rohrachse rotiert. Der Ausbrei-

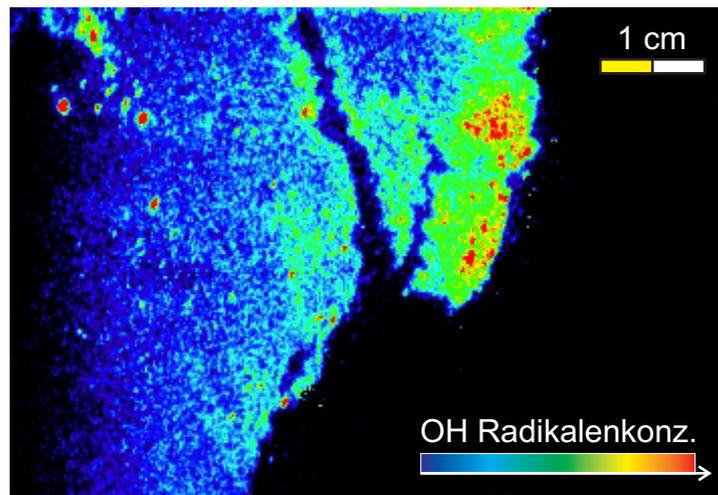


Abbildung 5.16: Visualisierung der OH-Radikalenverteilung einer Spindetonation. Gemischzusammensetzung: $\phi = 0.48$ H₂-Luft, Ausbreitungsgeschwindigkeit $u_F = 1580$ m/s, Hinderniskonfiguration “60-185-2000”.

tungsmechanismus einer Spindetonation wurde in der Literatur bereits detailliert untersucht (vgl. u.a. [ST65, SC74]), und sei an dieser Stelle nur aus Gründen der Vollständigkeit der beobachteten Brennverhalten aufgeführt.

Neben den Spindetonationen treten in diesem Bereich auch planare Detonationsformen auf. Dies erscheint für diesen Gemischbereich aus reaktionskinetischer Sicht durchaus als realistisch, da die Induktionslänge einer detonativen Flamme von $\phi = 0.48$ bei $\Delta = 1$ cm liegt⁷.

Abbildung 5.17 zeigt die Visualisierung der OH-Radikalenverteilung von Marginaldetonationen, bei denen die Detonationszellweite den 1.6-fachen Betrag des Rohrdurchmessers einnimmt. Durch die Stabilität des OH-Radikals ist deutlich zu erkennen, dass sich innerhalb des bereits abreagierten Gasgemisches Taschen von Frischgas befinden. Die Ausbildung von nicht abreagierten Frischgastaschen hinter einer Detonationsfront wurden unter idealisierten Bedingungen auch von Oran et al. [OYB⁺82] in einem rechteckigen Kanal der Dimension 7.6×0.6 cm in einem stöchiometrischen H₂-O₂ in 60% Ar Gemisch bei Drücken von ca. 8.65 kPa beobachtet. Diese Versuche weichen jedoch von den Bedingungen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Versuche stark ab. Zum einen ist die Versuchsanlage

⁷Berechnet mit ZND [She, She86] und dem Reaktionsmechanismus von Lutz et al. [LKM⁺88].

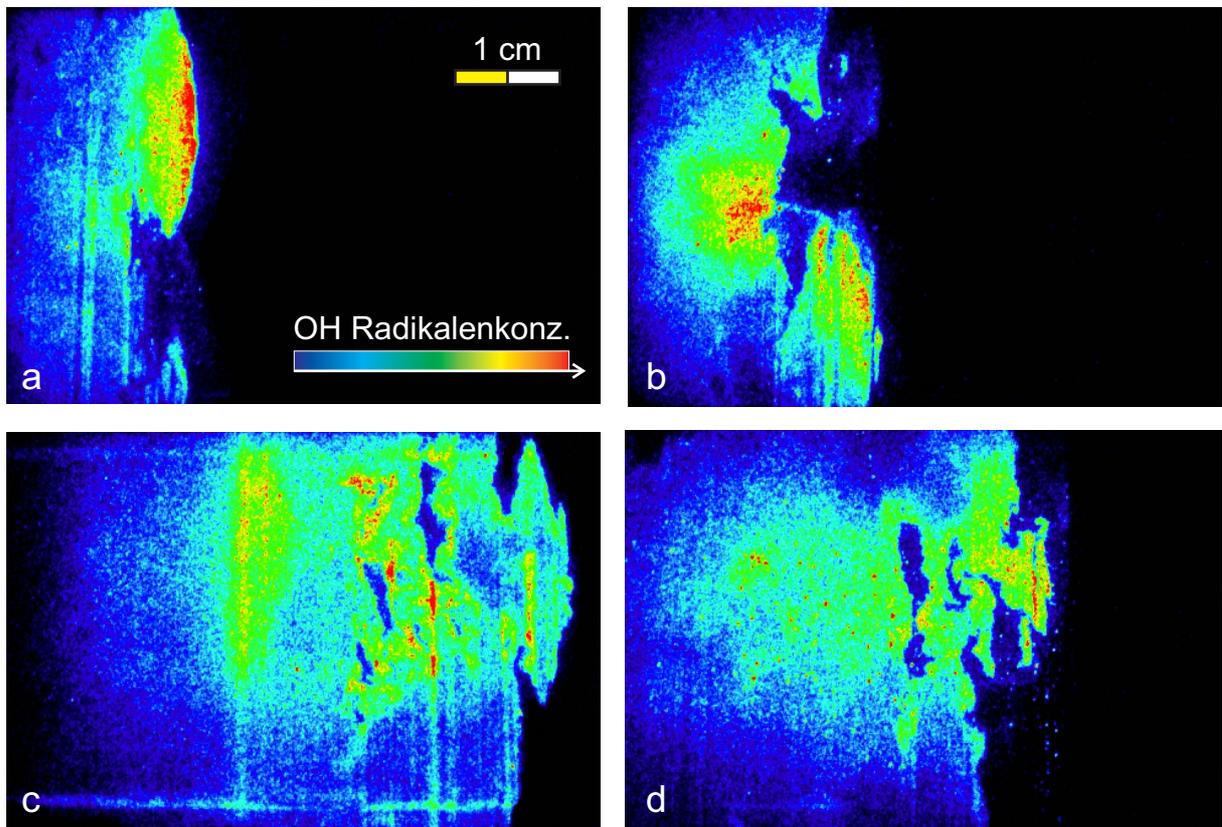


Abbildung 5.17: Visualisierung der OH-Radikalenverteilung einer planaren Marginaldetonation. Gemischzusammensetzung: $\phi = 0.52$ H₂-Luft, $\lambda/D \approx 1.6$, Ausbreitungsgeschwindigkeit $u_F \approx 1600$ m/s, verwendete Hinderniskonfiguration "60-185-2000". Jedes Bild repräsentiert einen einzelnen Versuch, der unter annähernd gleichen Randbedingungen durchgeführt wurde.



Abbildung 5.18: Reaktionsfortschritt einer Marginaldetonation eines stöchiometrischen H₂-O₂ in 60% Ar Gemisches, numerische Simulation von Oran [Ora99].

von Oran et al. durch die geometrischen Verhältnisse als rein zweidimensional zu betrachten und zum anderen – wie in Kapitel 2 dargestellt – weichen Ar-verdünnte $\text{H}_2\text{-O}_2$ -Gemische in ihrem Brennverhalten von H_2 -Luft Gemischen deutlich ab. Des weiteren konnten sich in der Versuchsanlage von Oran et al. durch die gewählte Gemischzusammensetzung zwei Detonationszellen in dem Kanal ausbilden, wohingegen in der vorliegenden Arbeit die Taschenbildung nur in dem Bereich $\lambda/\pi \leq D \leq \lambda$ auftrat. Oran wies in weiteren numerischen Studien nach (u.a. [Ora99]), dass diese nichtabreagierten Taschen auch in diesem Gemischbereich auftreten können, vgl. Abbildung 5.18. Aus den zeitlichen Momentaufnahmen der numerischen Simulation lassen sich zwei Mechanismen ableiten, die zu der Taschenbildung führen können.

Abbildung 5.19 zeigt schematisch eine Taschenbildung durch die Interaktion von Transversalwellen mit sich selbst oder mit der Rohrwand. Unmittelbar bevor Transversalwellen aufeinander treffen, nimmt die Reak-

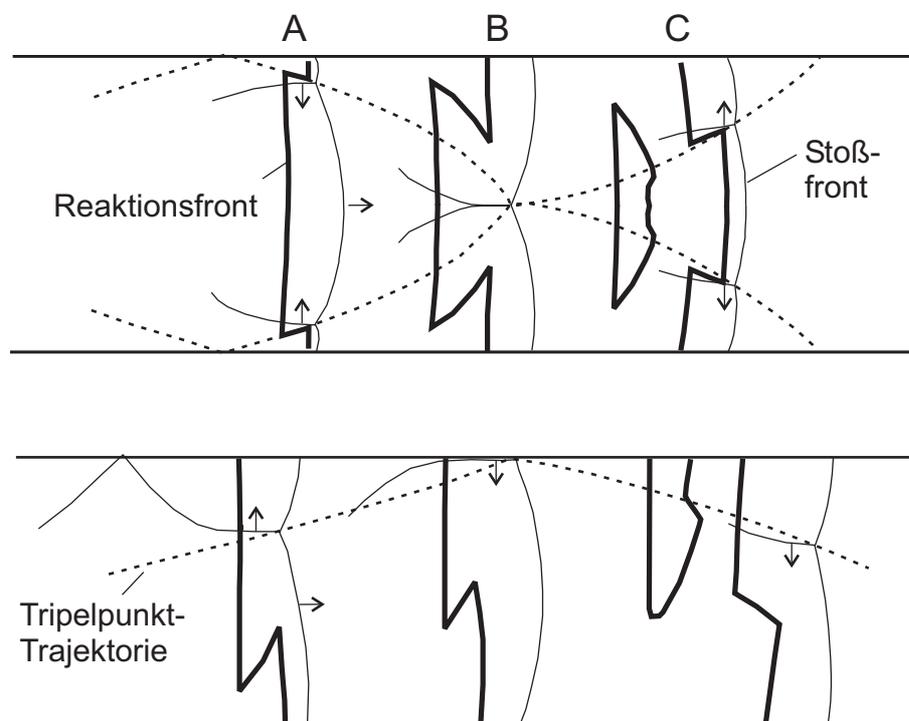


Abbildung 5.19: Schematische Darstellung der Ausbildung von nicht-reagierten Frischgasaschen durch Kollision von Transversalwellen (oben) oder durch die Kollision einer Transversalwelle mit einer Rohrwand (unten).

tionsfront eine offene, dreiecksförmige Gestalt an (siehe Abbildung 5.19 oben, Position B), da das Gemisch hinter den Machstämmen gerade in Gemischen hoher Aktivierungsenergien deutlich eher zündet als hinter einer einfachen Stoßfront. Im Moment der Transversalwellenkollision zündet das Gemisch unmittelbar hinter der Stoßfront noch bevor die ursprüngliche Reaktionsfront diesen Punkt erreicht. Dadurch bleibt ein unverbranntes Gebiet im Abgas zurück, da eine neue führende Reaktionsfront unmittelbar hinter dem neuen Machstamm entsteht. Ein vergleichbarer Mechanismus ist denkbar, wenn ein Tripelpunkt auf die Wand trifft, wie in Abbildung 5.19 unten dargestellt. Auch hier erfolgt bei großen Induktionslängen eine Zündung unmittelbar hinter dem Machstamm, weil diese Fluidbereiche bereits zum zweiten Mal von der Transversalwelle überstrichen werden. Ein wesentlicher Bestandteil der Taschenbildung ist, wie diese schematischen Darstellungen zeigen, dass die Stoßwellen aufgrund der unterschiedlichen Stoßstärken zwischen Machstamm und der einfachen Stoßfront eine erhebliche Krümmung besitzen. Dieser Effekt wirkt sich besonders bei großen Detonationszellweiten unterstützend auf den Prozess der Taschenbildung aus.

Diese Mechanismen lassen sich eindeutig anhand der in Abbildung 5.17 gezeigten Momentaufnahmen nachweisen. In Abbildung 5.17/a und b laufen zwei Stoßwellen aufeinander auf und schließen unverbranntes Gas ein, das auch noch unreaktiert bleibt, wenn die Detonationsfront sich bereits weiter ausgebreitet hat, Abbildungen 5.17/c und d.

Die Punktzündung nach der Transversalwellenkollision generiert Druckwellen in alle Richtungen. Damit erhöht sich zum einen der Druck an der führenden Reaktionsfront, wodurch die Reaktionsfront den Abstand zu dem führenden Verdichtungsstoß verringert. Zum anderen kommt es auch hinter der Reaktionsfront in der Ebene der Kollision zu einer Reaktion in der Mitte der Frischgastaschen, wodurch diese in zwei oder mehrere Teile separiert werden. Dieser Effekt ist deutlich aus Abbildung 5.17/d ersichtlich.

Die Frischgastaschen befinden sich in einem sehr sensitiven Bereich in Bezug auf den thermodynamischen Zustand (VN-Zustand). Die Reaktion des in diesen Taschen eingeschlossenen Frischgases ist jedoch nicht nur von der Induktionszeit abhängig, da sich die Bedingungen für eine Zündung

mit zunehmender Zeit verschlechtern. Vielmehr spielen gerade hier Instabilitäten sowie auch Fluktuationen der Strömungsgeschwindigkeit innerhalb bzw. hinter der Detonationsfront eine bedeutende Rolle für das Zündverhalten, was für die numerische Simulation von Detonationen in Bezug auf deren Komplexität eine wichtige Rolle spielt [GDO99a].

Generell sind zwei Mechanismen vorstellbar, wie das in diese Taschen eingeschlossene Frischgas abreagieren kann. In Gemischen mit geringer Aktivierungsenergie ist die Lebensdauer dieser Taschen nur sehr kurz und es kommt zu einer Selbstzündung durch die Kompression und Aufheizung der Stoßstruktur. Nimmt die Aktivierungsenergie und somit auch die Induktionszeit zu, treten vermehrt Wärme- und Stofftransportmechanismen mit dem verbrannten Gas und turbulente Effekte in den Vordergrund, die – ähnlicher einer turbulenten Flammenfront – zu einer Abreaktion der Taschen führen.

Verbrennen diese Taschen explosionsartig, so generieren sie starke Druckwellen, deren Energie den detonativen Ausbreitungsmechanismus weiter stützen und somit zu einem Erhalt der Detonationsfront beitragen. Andererseits ist es jedoch auch möglich, dass durch eine zu langsame Verbrennung die Detonationsfront nicht mehr ausreichend mit Verbrennungswärme versorgt wird und somit die Detonationsfront zerfällt. Dieser Effekt tritt um so stärker in Erscheinung, je größer die Frischgastaschen werden. Abbildung 5.20 zeigt die OH-Radikalenverteilung einer gerade noch stabilen Detonation mit $\phi = 0.57$ (links) sowie einer Detonation mit $\phi = 0.49$ (rechts), die unmittelbar nach der optisch zugänglichen Sektion der Versuchsanlage in eine Deflagration übergeht.

Obwohl die Gemischkonzentration der in Abbildung 5.20/a gezeigten Detonation größer ist als deren in Abbildung 5.17 gezeigten PLIPF-Messungen, sind die Taschen im ersten Fall deutlich größer. Dieses Beispiel soll vielmehr verdeutlichen, dass eine Vielzahl möglicher Taschenformen in diesem Gemischbereich existieren. Der Grund dafür liegt vorwiegend in der Tatsache, dass bei den hier betrachteten Detonationen lediglich nur ein bis zwei Transversalwellen existieren, wodurch sich je nach deren Position die Struktur der Detonationsfront periodisch verändert. Zum anderen zeigen die dargestellten PLIPF-Messungen lediglich Schnittbilder einer stark dreidimensionalen Struktur, wodurch oft keine zuverlässigen Annahmen über

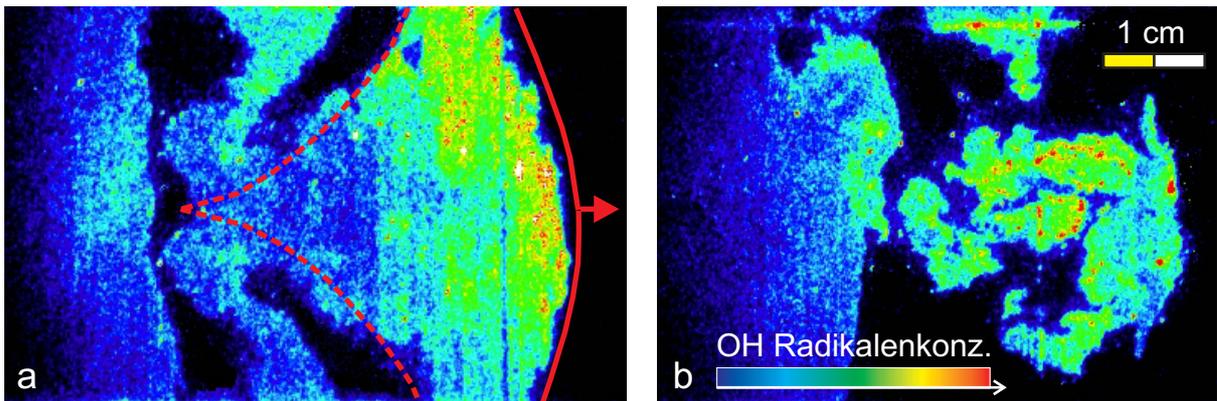


Abbildung 5.20: OH-Radikalenverteilung einer Detonation mit $\phi = 0.57$ (links, $u_F = 1650$ m/s) sowie einer zerfallenden Detonation mit $\phi = 0.49$ (rechts, $u_F = 1400$ m/s). Durchgezogene rote Linie symbolisiert den Hauptstoß, die gestrichelten Linien die Trajektorien der Tripelpunkte. Verwendete Hinderniskonfiguration: “60-185-2000”.

die gesamte Struktur möglich sind.

Abbildung 5.20/a zeigt den Schnitt durch die dreidimensionale Ausbildung einer Detonationszelle. Die Gemischzusammensetzung lässt hier genau eine Detonationszelle für die Detonationsausbreitung zu. Auch in diesem Fall zündet das Frischgasgemisch hinter dem Machstamm deutlich eher als hinter der einfachen Stoßwelle, wodurch die von den Transversalstößen induzierten Reaktionszonen die Rohrwand früher erreichen und somit Bereiche von unverbranntem Gemisch einschließen.

Verbrennen diese Taschen so langsam (gleichbedeutend mit einer großen Eindringtiefe in das verbrannte Gas), dass der Detonationsfront die erforderlichen Wärmemenge Q_{krit} nicht mehr zugeführt werden kann, so wird der Prozess der Taschenbildung noch verstärkt, da die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Detonationsfront unter die CJ-Geschwindigkeit fällt. Dadurch nimmt die Stärke des Hauptstoßes ab und somit die Induktionslänge erheblich zu. Abbildung 5.20/b zeigt die OH-Radikalenverteilung einer Detonation, die sich mit ca. 1500 m/s ausbreitet (CJ-Geschwindigkeit: 1605 m/s) und im weiteren Verlauf der Ausbreitung in eine schnelle Deflagration mit einer mittleren Ausbreitungsgeschwindigkeit von ca. 970 m/s übergeht. In diesem Fall ist der Ort der chemischen Energiefreisetzung von der Front zu weit entfernt, um eine Ausbreitung im CJ-Detonationsregime

aufrecht zu erhalten.

Trotz der Taschenbildung liegen die Ausbreitungsgeschwindigkeiten dieser marginalen Detonationen nahe an der CJ-Geschwindigkeit, das Geschwindigkeitsdefizit beträgt im Mittel lediglich ca. 5%. Dies lässt darauf schließen, dass die aus der Verbrennung der Frischgastaschen freiwerdende Energie zur Aufrechterhaltung der Detonationsfront beitragen kann. Gamezo et al. [GDO99b] konnten dies ebenfalls im Rahmen ihrer numerischen Arbeiten beobachten und zeigten durch Parameterstudien, dass die Verbrennung der Frischgastaschen Energie für die Detonationsfront liefern kann, wenn sie innerhalb eines Abstandes von ein bis zwei Detonationszellweiten zur führenden Front explosionsartig und dadurch vollständig abreagieren. Die Frage, wie groß die Frischgastaschen werden können, so dass die Detonation nicht in eine Deflagration zerfällt, konnte weder in den, im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Arbeiten⁸, noch in den numerischen Simulationen von Oran et al. bestimmt werden.

Ein wichtiger Parameter marginaler Detonationen ist die Anzahl der sich einstellenden Transversalstoßwellen. Dieser Parameter konnte weder mit den Meßmethoden der Schlierenphotographie noch mit der planaren Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz bestimmt werden. Die Transversalwellenzahl ist aber gerade für die Interpretation der PLIPF-Messungen von entscheidender Bedeutung. Aus diesem Grund wurden zusätzlich Eigenfluoreszenz-Messungen (Messmethode siehe u.a. [EJ99]) durchgeführt, wobei der Messaufbau identisch zu dem in Abbildung 4.7 ist, mit dem Unterschied, dass kein Laserlicht zur Anregung der OH-Moleküle in die Versuchsanlage eingespiegelt wurde. Diese Messungen dienen des weiteren auch dazu, den Anteil der Eigenfluoreszenz bei den PLIPF-Messungen zu bestimmen. Das Verhältnis der Intensitäten von Laser-induzierter Fluoreszenz und Eigenfluoreszenz betrug für den gesamten vermessenen Gemischbereich durch die Schmalbandigkeit der Filter und die kurze Verschlusszeit des Kamera-Systems mehr als eine Größenordnung. Aus diesem Grund konnte der Eigenfluoreszenzanteil bei den PLIPF-Messungen vernachlässigt werden kann.

⁸Der Grund dafür liegt darin, dass mit PLIPF-Systemen nach derzeitigem Stand der Technik nur Einzelbildaufnahmen durchgeführt werden können und die dafür nötige Reproduzierbarkeit der Versuche in diesem Gemischbereich nicht gewährleistet ist, vgl. Abbildung 5.12.

Wie exemplarisch in Abbildung 5.21 dargestellt, lag in diesem Gemischbereich vorwiegend nur eine Transversalwelle vor, d.h., es kann sich maximal nur eine halbe Detonationszelle in dem Explosionsrohr ausbilden, sofern man von einer planaren Detonation ausgeht. Interpretiert man die Zonen hoher Fluoreszenz-Intensität als Bereich hoher OH-Konzentrationen und hoher Temperatur, so kann man trotz der integral über die Messkammer erfolgten Messung feststellen, dass die Reaktion in einer schmalen Reaktionszone von nur wenigen Millimetern stattfindet. Der Ort der maximalen Reaktionsrate befindet sich erwartungsgemäß am Tripelpunkt des Stoßsystems. Jedoch kann man auch deutlich erkennen, dass an der Stoßfront die Reaktion sehr inhomogen verteilt ist und die Reaktion nur an einigen lokalen Punkten erfolgt. Die Verbrennung der Frischgasaschen konnte mit diesem Verfahren nicht beobachtet werden, da das dadurch emittierte Licht unterhalb der Sensitivität des Detektionssystems lag. Libouton et al. [LDvT81] hingegen konnten im Rahmen von Messungen der OH-Eigenfluoreszenz in $\text{H}_2\text{-O}_2\text{-Ar}$ Gemischen feststellen, dass starke Lichtemissionen in einem Abstand von ca. dreiviertel einer Detonationszellenlänge zur führenden Front auftraten. Dieses Ergebnis kann durchaus mit den nun bekannten Erkenntnissen der eingeschlossenen Frischgasaschen interpretiert werden.

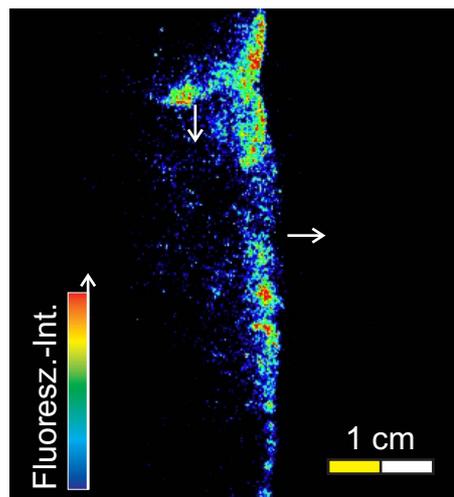


Abbildung 5.21: Eigenfluoreszenzbild einer marginalen Detonation bei $\phi = 0.53$. Ausbreitungsgeschwindigkeit $u_F = 1600$ m/s, verwendete Hinderniskonfiguration “60-185-2000”.

Detonationen, die bei niedrigen Gemischkonzentration beobachtet wurden, unterlagen auch stets langwelligen Geschwindigkeitsschwankungen im Bereich zwischen $0.85u_{CJ} < u_F < 1.15u_{CJ}$. Dieser pulsierende Ausbreitungsmechanismus wird, wie in Kapitel 2 dargestellt, in der Literatur als galoppierende Detonation bezeichnet und lässt sich in diesem Fall auf das Auftreten der Frischgastaschen zurückführen. Die Taschen werden zunehmend größer und senken dadurch die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Detonation. Kommt es zu einer Explosion eines Frischgaseinschlusses, so stärkt die dabei generierte Stoßwelle die Detonationsfront und die Geschwindigkeit steigt sprunghaft an. Erfolgt diese simultane Energiefreisetzung nicht in ausreichendem Maß, so zerfällt die Detonation, wie bereits oben beschrieben, in eine Deflagration.

5.1.3.3 Detonationen in Gemischen mit $\lambda < D$

Bei höheren Gemischkonzentrationen und somit auch kleineren Detonationszellweiten wurden die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Frischgastaschen trotz der vergleichbar hohen Aktivierungsenergien in diesem Gemischbereich (vgl. Abbildung 5.1, Seite 80) nicht beobachtet. Abbildung 5.22 zeigt die charakteristische zweidimensionale Verteilung der OH-Radikale von detonativen Flammen in Gemischen mit $\lambda < D$ für $\phi = 0.59$ sowie $\phi = 0.8$.

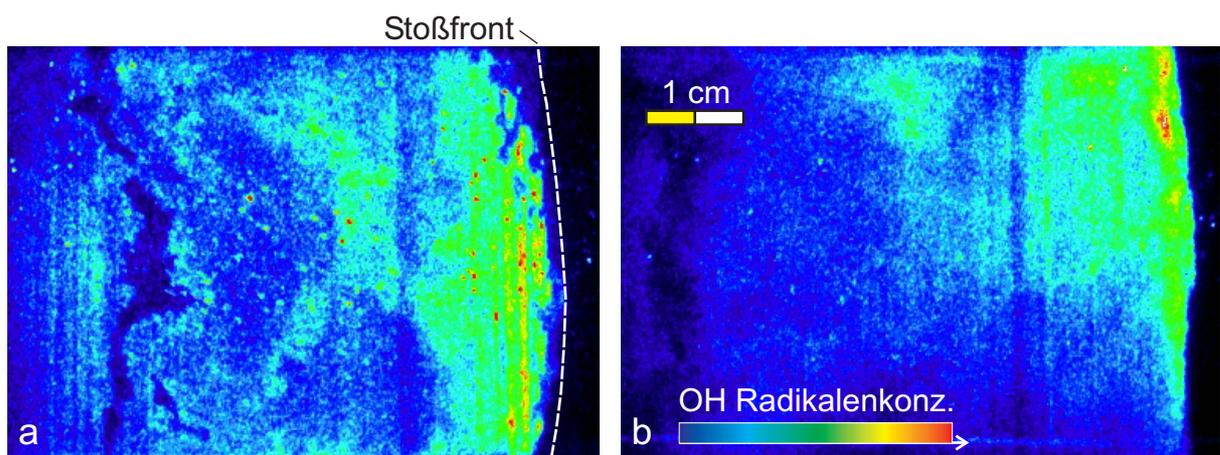


Abbildung 5.22: Verteilung der OH-Radikale bei Detonationen in Gemischen mit $\lambda < D$; (a) $\phi = 0.59$, $u_F = 1660$ m/s, (b) $\phi = 0.8$, $u_F = 1800$ m/s. Verwendete Hinderniskonfiguration: “60-185-2000”.

Für den Bereich nahe der Grenze $\lambda = D$ (Abbildung 5.22/a) zeigt sich, dass nur direkt an der Reaktionsfront Inhomogenitäten auftreten. Diese Inhomogenitäten entstehen durch geringfügige Variationen in der Zündverzugszeit und haben auf die Stabilität der Detonationsfront keinen Einfluss. Die Induktionslänge ist für diese Gemischzusammensetzung nach wie vor sehr groß. Der berechnete Wert liegt bei ca. 2 mm und stimmt gut mit dem Abstand zwischen Stoßwelle und Reaktionszone in Abbildung 5.22/a überein. Lediglich im oberen Bereich der Detonationsfront nimmt die Induktionslänge zu, wobei in diesem Randbereich die Inhomogenitäten, wie oben ausgeführt, am größten sind. Tragen mehrere Detonationszellen zur Stabilisierung der Detonationsfront bei (im Falle von Abbildung 5.22/b vier bis fünf Zellen), so beginnt die Reaktionszone über den gesamten Querschnitt verteilt an der gleichen Stelle, d.h. es liegt eine homogene Reaktionszonenverteilung vor. Die Induktionslänge für diese Gemischzusammensetzung beträgt nach Berechnungen mit dem ZND-Code lediglich 0.2 mm.

Die in diesem und in dem vorangegangenen Abschnitt dargestellten PLIPF-Messungen lassen vermuten, dass gerade marginale Detonationen nicht mehr mit eindimensionalen Modellen erfasst und beschrieben werden können. Abbildung 5.23 zeigt drei über den Querschnitt der PLIPF-Messungen gemittelte Verläufe der OH-Intensität der Abbildungen 5.17, 5.20 und 5.22/b, welche für diesen qualitativen Vergleich als relative mittlere OH-Konzentration betrachtet werden können. Das gemittelte OH-Profil der Detonation mit $\phi = 0.80$ folgt qualitativ dem berechneten Verlauf (vgl. Abbildung 2.14, Seite 37). Die einzige Abweichung liegt daran, dass der maximale OH-Peak nicht im gemessenen Verlauf wiedergegeben werden kann. Dies liegt zum einen darin, dass der Peak nur ca. 1 mm breit ist und durch die Kameraauflösung nicht vollständig erfasst werden konnte und zum anderen an dem pulsierenden Ausbreitungsverhalten von Detonationen, wodurch die Position der Reaktionszone im Verhältnis zu der Stoßwelle von Zelle zu Zelle variiert. Nahe der Grenze für planare Detonationen ($\phi = 0.5$) ist der Verlauf ebenso gut in Analogie mit dem ZND-Modell, lediglich die Zone maximaler OH-Konzentration ist geringfügig breiter verglichen mit dem für $\phi = 0.80$ gezeigten Verlauf.

Bei der marginalen Detonation ($\phi = 0.52$) ist deutlich zu erkennen, dass

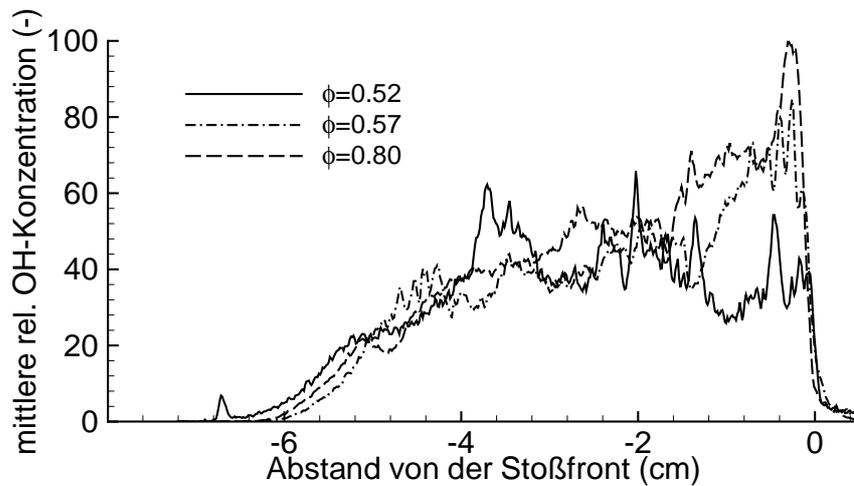


Abbildung 5.23: Verlauf der OH-Konzentration über der Reaktionsfront für verschiedene Stöchiometrieverhältnisse. Mit abnehmendem Stöchiometrieverhältnis nimmt die Taschenbildung zu, wodurch sich eine Verbreiterung der Reaktionszone ergibt.

sich die Reaktionszone über einen Bereich von mehreren Zentimetern verteilt. Im Gegensatz zu den Detonationen bei $\phi = 0.80$ und $\phi = 0.57$ treten hier mehrere kleine Peaks auf, welche auf die Reaktionsfronten um die Frischgastaschen herum zurückgeführt werden können. Ebenso ist deutlich erkennbar, dass die OH-Konzentration im Mittel leicht ansteigt, d.h. die größte Energiefreisetzung erfolgt nicht unmittelbar hinter der Stoßwelle sondern nahezu gleichmäßig über einen im Detonationsmaßstab sehr großen Bereich von ca. 4 cm. Dieses Energiefreisetzungsbereich ist deutlich kleiner als eine Detonationszellenlänge in diesem Gemischbereich, wodurch das von Oran et al. gefundene Stabilitätskriterium für eine Ausbreitungsgeschwindigkeit nahe der CJ-Geschwindigkeit erfüllt ist.

5.1.3.4 Flammenstrukturen am Ende der Hindernisstrecke

Wie bereits in den in Kapitel 5.1.2 dargestellten Farbschlieraufnahmen zur Kopplung von Stoßfront und Reaktionszone erkennbar, ist das Brennverhalten gerade am Übergang von der Hindernisstrecke in das unblockierte Rohr für den weiteren Verlauf der Flammenausbreitung von entscheidender Bedeutung. Gerade die Frage, welches Brennverhalten (deflagrativ oder stoßinduziert) am Hindernisaustritt auftritt, kann mittels der Farb-

schlierenphotographie nicht eindeutig erklärt werden. Aus diesem Grund wurde die Flammenstruktur am Hindernisaustritt zusätzlich mit der planaren Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz gemessen. Anhand der Erkenntnisse aus dem vorangegangenen Abschnitt kann eindeutig ein stoßinduziertes Brennverhalten von einem deflagrativen unterschieden werden, was gerade für den Übergang von der Deflagration in die Detonation an dieser Stelle im Explosionsrohr besonders wichtig ist.

Abbildung 5.24 zeigt charakteristische Verteilungen der OH-Radikalkonzentration unmittelbar nach dem letzten Hindernis der Konfiguration “60-185-3000”⁹ für verschiedene Gemischzusammensetzungen. Abbildung 5.24/a zeigt eine deflagrative Flamme bei einer Gemischzusammensetzung von $\phi = 0.45$, welche sich mit der isobaren Schallgeschwindigkeit von ca. 800 m/s ausbreitet. Diese Flammenkontur zeigt alle Merkmale einer hochturbulenten Flamme auf, in welcher große Wirbel die Flammenstruktur makroskopisch dehnen und teilweise in die Strömungsstruktur miteinschließen (erkennbar an dem exemplarisch eingezeichneten Wirbel) sowie mikroskalige Wirbel, die in die Flammenstruktur eindringen und somit zu lokalen Löscheffekten sowie einer global gesehen breiteren Flammenfront führen (siehe OH-Verteilung am unteren Bildrand von Abbildung 5.24/a).

Verlässt die Flamme bei höheren Gemischkonzentrationen die Hindernisstrecke mit einer Geschwindigkeit größer als die isobare Schallgeschwindigkeit, so zeigen sich deutliche Unterschiede in der Flammenstruktur. Abbildung 5.24/b und c zeigen Momentaufnahmen von Flammenstrukturen, bei welchen die Flamme die Hindernisstrecke mit einer Geschwindigkeit von ca. 1000 m/s verlässt. Wie bereits in Kapitel 5.1.2 eingehend dargestellt, handelt es sich in diesem Gemischbereich um Quasidetonationen, die in der Mitte der Hindernisstrecke ihre Maximalgeschwindigkeit erreichen und nach der Hindernisstrecke wieder in den deflagrativen Verbrennungsmodus übergehen. Diese Flammenstrukturen weisen weder die typischen Strukturmerkmale einer Deflagration auf, noch gleichen sie den im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Detonationsformen. Vielmehr handelt es sich um Flammenstrukturen, die aufgrund ihrer relativ planaren Form

⁹Die Hinderniskonfiguration “60-185-3000” wurde für die PLIPF-Messungen so montiert, dass das letzte Hindernis bündig mit dem Rand des sichtbaren Bereichs abschließt. Die Anzahl der eingesetzten Hindernisse blieb dabei gleich, lediglich das erste Hindernis hatte einen größeren Abstand zum Zündflansch.

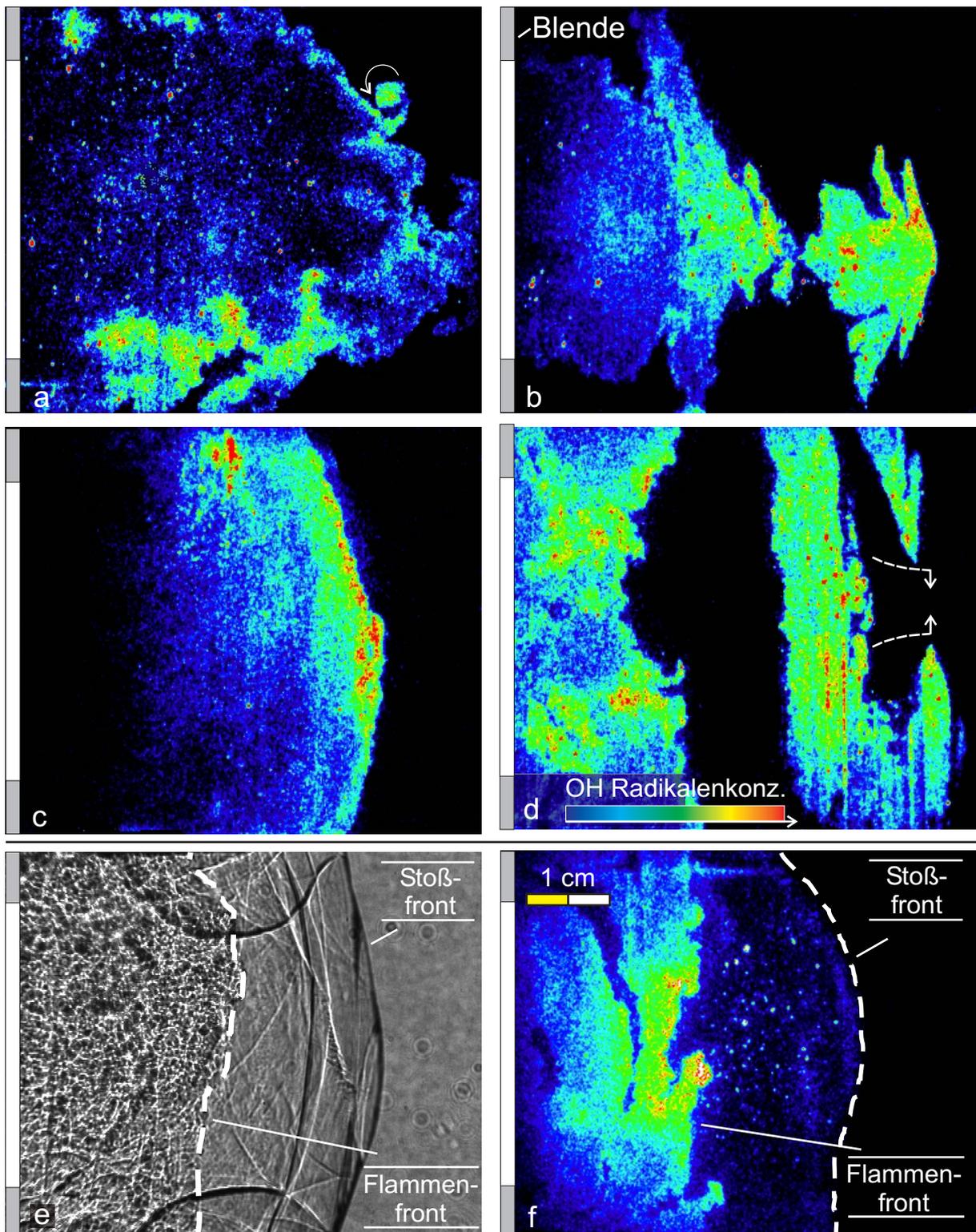


Abbildung 5.24: Verteilung der OH-Radikalkonzentration direkt am Hindernisaustritt der Konfiguration "60-185-3000": (a) $\phi = 0.45$, $u_F = 800$ m/s; (b) $\phi = 0.473$, $u_F = 950$ m/s; (c) $\phi = 0.515$, $u_F = 1060$ m/s; (d) $\phi = 0.58$, $u_F = 1320$ m/s; (e/f) Vergleich Schlierenbild mit OH-PLIPF Messung, $\phi = 0.57$, $u_F = 1100$ m/s.

auf einen stoßinduzierten Verbrennungsmechanismus deuten, wobei aber die detektierte OH-Fluoreszenz um ca. die Hälfte niedriger ist als sie bei dieser Gemischkonzentration für Detonationen beobachtet wurde.

Bei geringfügig niedrigeren Konzentrationen (siehe Abbildung 5.24/b) treten abgelöste Reaktionszonen auf, deren Struktur ebenso auf eine stoßinduzierte Zündung schließen lassen. Berechnungen mit dem CHEMKIN-II Programmpaket zeigen aber, dass sich selbst bei einer angenommenen Ausbreitungsgeschwindigkeit von $u_F = 1400$ m/s eine Zündung erst im Abstand von ca. 3 m hinter der Stoßwelle einstellen würde (unter hypothetischer Annahme einer über die Induktionszeit konstanten, durch die Stoßwelle induzierten Strömungsgeschwindigkeit von 1096 m/s). Aus diesen Abschätzungen lässt sich schließen, dass es sich bei diesen Flammenstrukturen um zerfallende Quasidetonationen handeln muss, die ihre stoßinduzierte Ausbreitungsgeschwindigkeit aufgrund der im unblockierten Rohr nicht vorhandenen Transversalstoßstruktur über einen längeren Rohrabschnitt nicht aufrechterhalten können. Ein direkter Vergleich mit einer Schlierenaufnahme (Abbildung 5.24/e) bei einer vergleichbaren Gemischzusammensetzung und geometrischen Konfiguration zeigt, dass sich unmittelbar hinter dem letzten Hindernis ein komplexes System von longitudinalen und transversalen Stoßwellen einstellt, welches zur lokalen Druck- und Temperaturerhöhung zwischen Stoßwelle und Flamme führt, wodurch eine stoßinduzierte Zündung, wie sie in den PLIPF-Bildern nach der Hindernisstrecke beobachtet wurde, erklärt werden kann. Bei ausreichender Stoßstärke (Abbildung 5.24/f) ist selbst in der PLIPF-Messung der führende Verdichtungsstoß erkennbar, da durch die Verschiebung des chemischen Gleichgewichts der OH-Anteil für diesen thermodynamischen Zustand über der Detektionsgrenze des eingesetzten PLIPF-Systems liegt. Dieser Vergleich zeigt, dass die Schlierenmesstechnik in diesem Fall keine Unterscheidung von deflagrativen und stoßinduzierten Flammen zulässt, dieser Nachweis kann nur mit dem PLIPF-Verfahren erfolgen. Die Schlierenmessung legt hier die Vermutung nahe, dass eine deflagrative Flamme dem Stoßsystem folgt, die PLIPF-Messungen hingegen zeigen, dass es sich um ein stoßinduziertes Brennverhalten handelt, das im weiteren Verlauf, wie in Abbildung 5.15 (Seite 104) dargestellt, in eine Deflagration übergeht.

Abbildung 5.24/d zeigt den Übergang einer Quasidetonation in eine CJ-

Detonation nach der Hindernisstrecke. Auch hier liegt keine homogene Reaktionszone vor, da die Stärke der sich mit Quasidetonationsgeschwindigkeit ausbreitenden Stoßfront nicht ausreicht, eine gleichmäßige Zündung herbeizuführen. Jedoch ist die Energiefreisetzung hinter der Stoßfront groß genug, der Stoßwelle eine überkritische Wärmezufuhr zuzuführen, wodurch diese nach dem bekannten und in Kapitel 2 dargestellten Mechanismus spontan eine zellulare Struktur aufbaut. In Abbildung 5.24/d ist deutlich erkennbar, wie sich von den Wänden zwei Reaktionszonen auf die Rohrachse zubewegen, welche von zwei Transversalwellen induziert werden (gestrichelte Linien). Die Kollision der Transversalwellen führt in der weiteren Folge zu einer Mikroexplosion des Gemisches wodurch eine Detonationsfront mit einer einzelligen Struktur entsteht (Abbildung 5.20, Seite 111).

5.1.4 Mechanismen der Detonationsentstehung ohne Hinderniseinfluss

Neben den durch Hindernis-induzierte Beschleunigung von Flammen ausgelösten Detonationen wurde ebenso beobachtet, dass deflagrative Flammen auch im vollständig unblockierten Explosionsrohr in Detonationen übergehen können. Dies widerspricht jedoch den oben dargestellten Erkenntnissen über die Voraussetzungen für das Eintreten einer Detonation (kritische Flammengeschwindigkeit, Abstand Stoßwelle-Flamme).

Abbildung 5.25 (oben) zeigt exemplarisch einen charakteristischen Verlauf der Flammenausbreitungsgeschwindigkeit über der Rohrlänge im unblockierten Rohr bei einer Gemischzusammensetzung von $\phi = 0.975$. Die Flamme beschleunigt infolge von fluid- und gasdynamischen Rückkopplungseffekten auf eine Ausbreitungsgeschwindigkeit von ca. 150–200 m/s (Phase I), was nach den von Beauvais [Bea94] in der gleichen Versuchsanlage durchgeführten Versuchen ohne Hindernisse einer Brenngeschwindigkeit von ca. 35 m/s entspricht. Bei dieser Geschwindigkeit erfolgt ein Geschwindigkeitssprung auf 750 m/s (Phase II) und im weiteren Abstand von ca. 1 m ein Übergang in die Detonation (Phase III).

Der Mechanismus, der hier zu einem DDT führt, lässt sich trotz der unterschiedlichen Entstehung grundlegend auf die Phänomene bei der Wechsel-

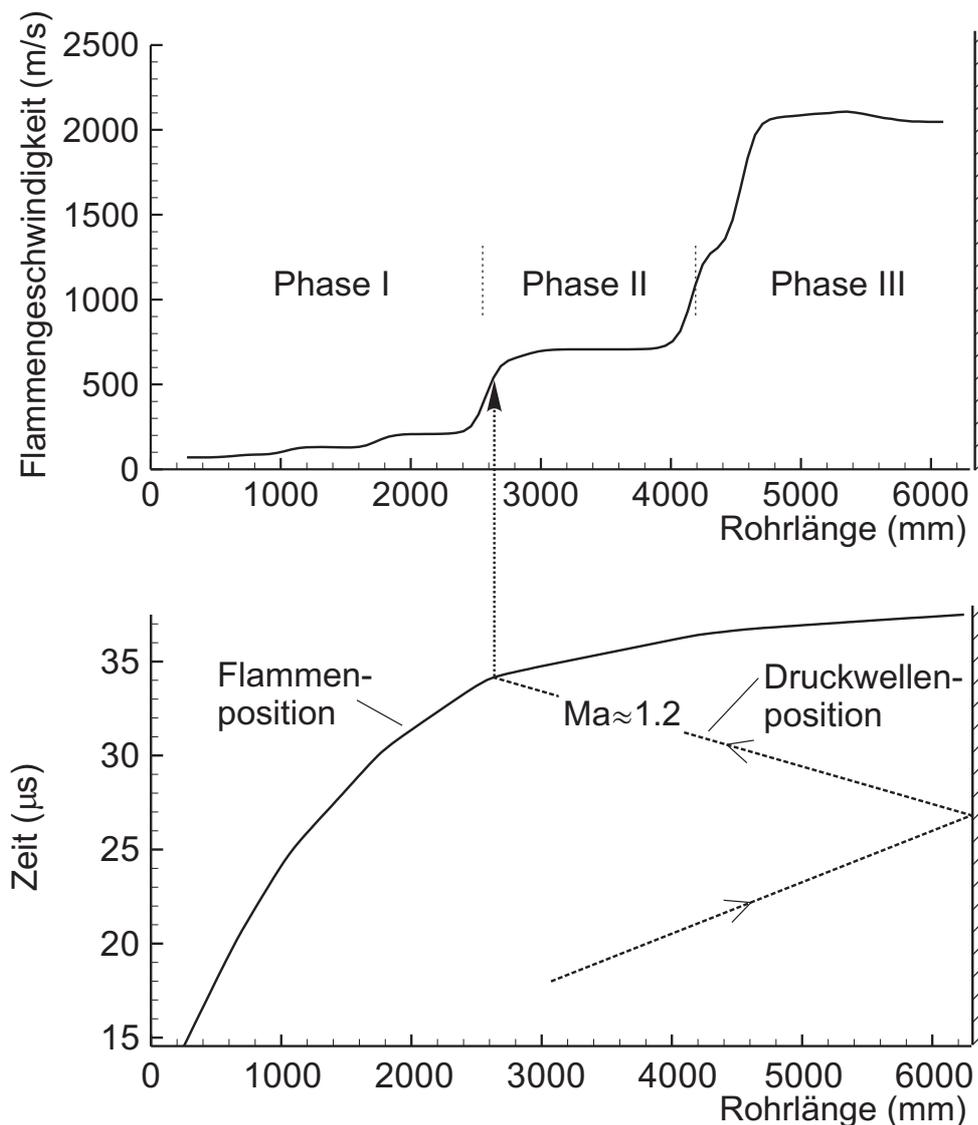


Abbildung 5.25: Flammengeschwindigkeit und Detonationsentstehung infolge einer Richtmyer-Meshkov Instabilität, $\phi = 0.975$.

wirkung zwischen einer Druckwelle und einer Flammenfront, wie sie auch nach einer Hindernisstrecke auftreten, zurückführen. Unterschiedlich dazu ist der Mechanismus, der die Flamme auf eine Geschwindigkeit beschleunigt, bei der ein Übergang in die Detonation möglich ist: In der ersten Phase der Flammenausbreitung werden kontinuierlich Druckwellen gebildet, welche der Flamme vorausseilen. Diese Druckwellen sind sehr schwach und breiten sich lediglich mit $\text{Ma} \approx 1.2$ aus ($p_2/p_1 \approx 1.5$), dennoch ist ihre Geschwindigkeit um den Faktor drei größer als die Flammenausbreitungsgeschwindigkeit. Dadurch erreichen diese Druckwellen das Rohrende

deutlich eher, werden reflektiert und breiten sich entgegen der Flammenrichtung aus. Abbildung 5.25 (unten) zeigt den Verlauf der Flammenposition sowie der Druckwellenposition über der Rohrlänge. An der Position $x = 2600$ mm trifft die reflektierte Druckwelle auf die Flammenfront, wodurch, wie in Abbildung 5.25 (oben) deutlich erkennbar, die Flammengeschwindigkeit sprunghaft auf 750 m/s ansteigt. Der Grund dafür liegt in der Wechselwirkung zwischen der Flamme und dieser Druckwelle, auf die in der Folge näher eingegangen wird.

Abbildung 5.26 zeigt exemplarisch diese Wechselwirkung anhand einer Hochgeschwindigkeits-Schlierenfotografie, die am besten in einem mit CO_2 verdünnten H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0.4$ beobachtet wurde (siehe Abschnitt 5.3.1). Bei dieser Gemischzusammensetzung tritt zwar kein so deutlicher Geschwindigkeitssprung wie in Abbildung 5.25 auf, jedoch lassen sich die global an der Flammenfront auftretenden Wechselwirkungen aufgrund der langsameren Ausbreitungsgeschwindigkeiten mit einer höheren zeitlich Auflösung beobachten. Die Beimengung von geringen Mengen CO_2 hat auf die relevanten deflagrativen Verbrennungsparameter (z.B. Le-Zahl,

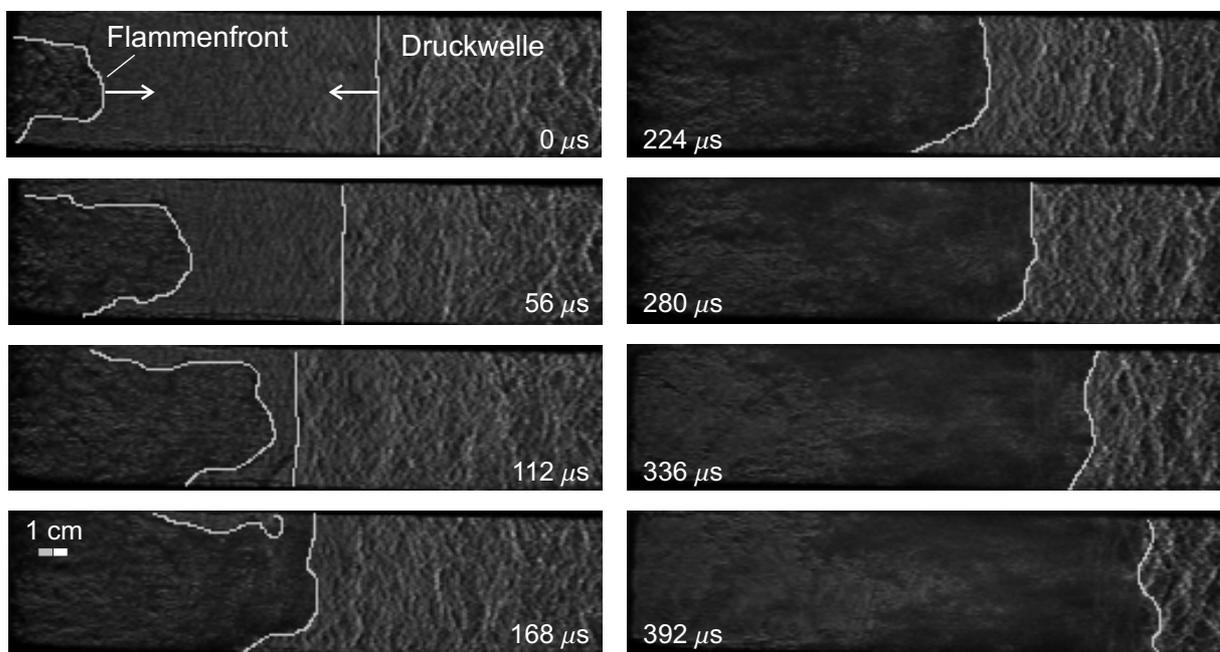


Abbildung 5.26: Hochgeschwindigkeits-Schlierenfotografie einer Wechselwirkung einer Druckwelle mit einer deflagrativen Flammenfront, H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0.4$, verdünnt mit 5 vol % CO_2 .

Zel'dovich-Zahl β , etc.) einen vernachlässigbaren Einfluss. Daher sind die in Abbildung 5.26 dargestellten Vorgänge auf die in diesem Kapitel behandelten Wasserstoff-Luft Gemische vollständig übertragbar.

Die Flammenfront weist am Eintritt in die optische Sektion eine sehr große Amplitude¹⁰ auf. Kollidiert diese Flammenfront mit einer schwachen Druckwelle (Zeitpunkt $t = 168 \mu\text{s}$), so ändert sich die globale Flammenkontur. Die Amplitude der Flamme nimmt ab und sie breitet sich als nahezu planare Deflagration weiter aus. In der Mitte der Flammenoberfläche ist zu erkennen, dass sich die Flamme infolge des Impulseintrags entgegen ihrer Ausbreitungsrichtung konkav einstülpt. Die horizontalen Anteile der Flammenoberfläche werden von dem induzierten Druckgradienten nicht beeinflusst, wodurch sich zum Zeitpunkt $t = 280 \mu\text{s}$ eine vertikale und planare Flammenkontur einstellt. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flamme ist nach der Kollision zunächst geringer als noch im ungestörten Fall, da die Druckwelle der Strömung des unverbrannten Gemisches vor der Flamme entgegenwirkt. Durch die Expansion des heißen Gases baut sich jedoch sehr schnell wieder eine Strömung vor der Flamme auf, wobei sich die Flamme nach der Kollision absolut gesehen schneller ausbreitet. Dies lässt den Schluss zu, dass hier, im Gegensatz zu den oben dargestellten Versuchen mit höher Ausbreitungsgeschwindigkeit, die Reaktionsrate der Flamme infolge der Kollision stark zugenommen hat.

Betrachtet man die Flamme als Dichtediskontinuität bei annähernd gleichen Druckverhältnissen vor und hinter der Diskontinuität, so lässt sich dieser flammenbeschleunigende Mechanismus auf die bei einer Richtmyer-Meshkov Instabilität auftretenden Phänomene zurückführen und beschreiben. Khokhlov und Oran [KO99] führten zum besseren Verständnis dieser Phänomene hochaufgelöste numerische Studien (siehe Abbildung 5.27) für Acetylen-Luft Gemische durch (Rechengebiet $12.5 \times 2.5 \text{ mm}$). Im Moment der Interaktion wölbt sich auch hier die Flammenoberfläche trichterförmig ein [Mar64], wobei unverbranntes Gemisch in das verbrannte Gemisch hineingezogen wird. An der Spitze des hineingezogenen, unverbrannten Gemisches bildet sich eine pilzartige Ausstülpung aus, was ein Charakteristikum der Richtmyer-Meshkov Instabilität darstellt. Diese pilzartigen Aus-

¹⁰Als Amplitude einer sogenannten sinusförmigen deflagrativen Flamme wird in der Literatur die gesamte Ausdehnung der Reaktionszone in Ausbreitungsrichtung bezeichnet, vgl. [KO99, KOT99, KOCW99].

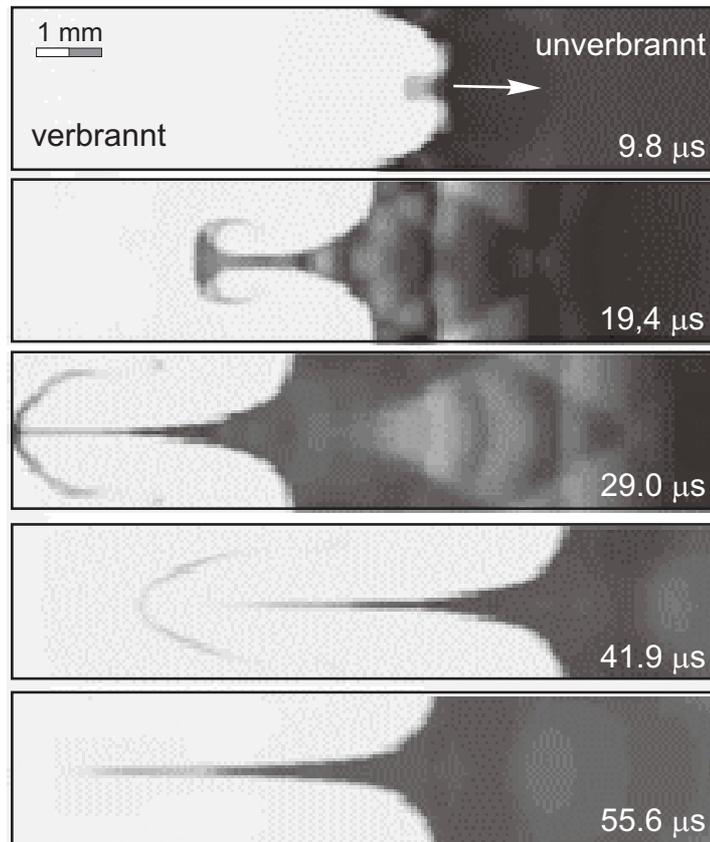


Abbildung 5.27: Zweidimensionale Dichteverteilung einer Stoßwelle-Flamme Interaktion nach einer numerischen Simulation von Khokhlov und Oran [KO99]. Die letzten beiden Momentaufnahmen wurden örtlich verschoben, um eine bessere Darstellung der Flammenfront zu ermöglichen.

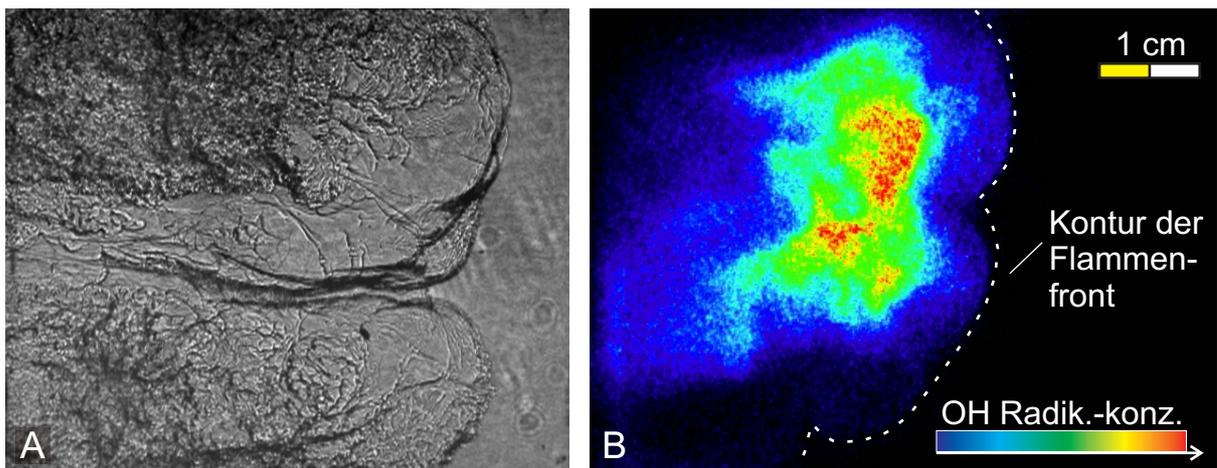


Abbildung 5.28: Flamme-Stoß Wechselwirkung im Explosionsrohr bei der Konfiguration ohne Hindernisse in einem H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0.98$, A: Schlierenmessung, B: PLIPF-Messung.

stülpungen reagieren sehr schnell ab, in dreidimensionalen Simulationen, wie von Oran et al. nachgewiesen, sind sie kaum mehr zu erkennen und haben daher keinen Einfluss auf die Flammenbeschleunigung.

Abbildung 5.28 zeigt zwei Momentaufnahmen der Flamme-Stoß Wechselwirkung im Explosionsrohr bei der Konfiguration ohne Hindernisse in einem H_2 -Luft Gemisch von $\phi = 0.98$ als hochaufgelöste Schlierenaufnahme (links) sowie eine entsprechende, mit PLIPF bestimmte OH-Radikalenverteilung (rechts). Bei diesen Aufnahmen traf die reflektierte Stoßwelle direkt in dem optisch zugänglichen Rohrsegment auf die Flammenfront, d.h. diese exemplarisch dargestellten Momentaufnahmen entsprechen im zeitlichen Verbrennungsablauf der Stoß-Flamme Interaktion.

Die Schlierenmessung weist die gleichen Strukturen auf wie sie auch in der kleinskaligen numerischen Simulation von Khokhlov und Oran beobachtet werden konnten. Die Flamme ist in der Mitte stark eingestülpt, wodurch auch hier davon ausgegangen werden kann, dass Frischgas in die Reaktionszone hineingezogen wurde. Die PLIPF Messung bestätigt dieses Ergebnis. Hinter der eigentlichen Flammenfront – welche in Abbildung 5.28/B aufgrund der hohen Intensitätsunterschiede nur noch schwach erkennbar ist – existiert ein Bereich sehr hoher OH-Intensität. Die maximale OH-Konzentration in diesem Bereich ist ca. doppelt so hoch wie bei Detonationen, weshalb diese hohe Energiefreisetzungsrates nicht weiter mit den bekannten deflagrativen Ausbreitungsmechanismen erklärt werden kann.

Eine Erklärung für die hohe Reaktionsrate ist anhand von drei Effekten möglich. Wird bei einer Deflagration Frischgas hinter die Reaktionszone eingebracht, so treten identische Effekte auf, wie sie auch bei den Frischgastaschen von Detonation beschrieben wurden. Im Falle von Richtmyer-Meshkov Instabilitäten reicht jedoch der thermodynamische Zustand nicht für eine Selbstzündung aus, wodurch von einem deflagrativen Abbrand dieser Bereiche ausgegangen werden muss. Wird deshalb Frischgas durch eine Einstülpung in die Reaktionszone hineingezogen, vergrößert sich die effektive Flammenoberfläche erheblich, was global zu einer erhöhten Energieumsetzungsrate führt.

Ein zweiter Grund für die Änderung der Reaktionsrate ist die sprunghafte Änderung des vorherrschenden Druckniveaus in der Reaktionszone,

wenn die reflektierte Stoßwelle die Flammenfront passiert. Diese Änderung der Reaktionsrate wurde von Chu [Chu53] analytisch beschrieben und auf die Verhältnisse bei der Stoß-Flamme Wechselwirkung von Scarinci et al. [SLT⁺92] übertragen. Scarinci et al. geben als Gleichung für die relative Änderung der Reaktionsrate $\Delta\omega$ einer Reaktionszone bei einer Änderung des Druckniveaus von p_1 nach p_2

$$\Delta\omega = \frac{1}{\kappa - 1} \frac{p_1(1 + (p_2 - p_1)/p_1)(c_2 + c_1)((p_2 - p_1)/p_1)}{\sqrt{\left(\frac{\kappa+1}{2\kappa} \left(\frac{p_2-p_1}{p_1}\right) + 1\right)}} \quad (5.1)$$

an. Die effektive Änderung der Reaktionsrate durch das höhere Druckniveau berechnet sich nach Scarinci et al. aus dem Verhältnis der relativen Reaktionsratenerhöhung zu der im niedrigen Druckniveau vorherrschenden Reaktionsrate von $\omega_1 = \rho_1 Q u_B$, wobei Q die Wärmezufuhr bei konstantem (Ausgangs-)Druck ist und im Rahmen dieser Arbeit mit STANJAN berechnet wurde. Setzt man die relevanten Werte für die in Abbildung 5.25 und 5.28 gezeigten Beispiele ein, so ergibt sich eine Verzehnfachung der Reaktionsrate. Aus dieser Beziehung wird auch deutlich, dass der Ausgangszustand einen wichtigen Einfluss auf die Auswirkungen der Richtmyer-Meshkov Instabilität hat. Bei niedrigen Brenngeschwindigkeiten kann somit gezeigt werden, dass die Reaktionsrate stark zunimmt. Scarinci et al., die als ungestörte Flammen lediglich laminare, kugelförmige Flammen untersuchten, beobachteten Steigerungen der Reaktionsrate um einen Faktor von mehr als 100.

Die Gründe für die in Abbildung 5.28 erkennbare Zone hoher Energiefreisetzung wird stark von der hohen Turbulenz beeinflusst, welche durch die Richtmyer-Meshkov Instabilität induziert wird. Richtmyer-Meshkov Instabilitäten induzieren, wie in Kapitel 2 beschrieben, Kelvin-Helmholtz Instabilitäten, welche durch die entgegengesetzte Bewegung zweier Fluide entstehen. Wie die hochaufgelösten numerischen Studien von Khokhlov und Oran [KO99] zeigen, bilden sich an der Scherschicht teilweise starke Wirbelstrukturen aus, wobei die Wirbelstrukturen von der Relativgeschwindigkeit der Fluide abhängen. Gerade durch die große Diskontinuität bei der hier beobachteten Richtmyer-Meshkov Instabilität entsteht eine so starke Wirbelstruktur, dass das Abgas mit dem eingebrachten Frischgas

nach dem Passieren der Stoßwelle stark vermischt wird. Die Vermischung erfolgt durch den Stoß sprunghaft und somit schneller, als die beteiligten Reaktionspartner reagieren können. Dadurch entsteht eine Reaktionszone, die einem homogenen Reaktor gleicht (vgl. Abbildung 2.4, Seite 16), wodurch eine volumetrische Energiefreisetzung in dieser von hoher Turbulenz durchmischten Zone stattfindet.

Diese volumetrische Energiefreisetzung reicht, wie in den Experimenten beobachtet wurde, nicht aus, um direkt eine Detonation auszulösen. Vielmehr geht die Flamme in einen Zustand über, in welchem alle oben genannten Voraussetzungen für den Übergang in eine Detonation erfüllt sind. Bei der Interaktion der Stoßwelle mit der Flamme entsteht durch Reflektion an der Dichtediskontinuität eine Stoßwelle in Flammenausbreitungsrichtung, die das unverbrannte Gasgemisch vorkonditioniert. Die hohe Reaktionsrate infolge der Richtmyer-Meshkov Instabilität generiert weitere Druckwellen, wodurch ein Induktionszeitengradient vor der Flamme entsteht und somit die Voraussetzungen für einen SWACER Mechanismus gegeben sind.

Flammenbeschleunigungen infolge der Richtmyer-Meshkov Instabilitäten wurden nur bis zu deflagrativen Ausbreitungsgeschwindigkeiten von bis zu $u_F = 200$ m/s und im Zusammenhang mit Stoßwellen nahe der Schallgrenze beobachtet. Wie bereits in Abbildung 5.4 (Seite 85) dargestellt, führt dabei die stärkere stoßinduzierte Turbulenz bei höheren Stoßgeschwindigkeiten zu einer lokalen Löschung der Flammenfront. Die chemischen Reaktionsketten werden durch die Vermischung mit dem kalten Abgas abgebrochen und die Flamme erlöscht bzw. breitet sich nur noch mit einer sehr niedrigen Geschwindigkeit aus.

Abbildung 5.29 zeigt die Verteilung der maximalen Flammengeschwindigkeit über dem Stöchiometrieverhältnis im Rohr ohne Hindernisse. Die Flammen-/Druckwelleninteraktion hat erst ab einem Stöchiometrieverhältnis von $\phi \approx 0.7$ eine beschleunigende Wirkung auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit. Die maximale Flammengeschwindigkeit für Gemische mit geringerem Brennstoffanteil liegt im unblockierten Rohr unter 100 m/s.

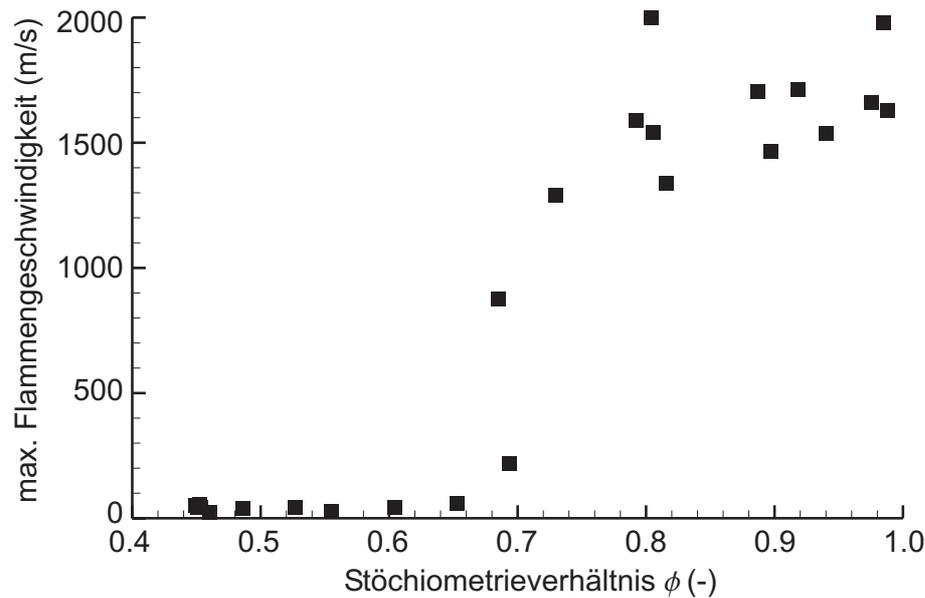


Abbildung 5.29: Verteilung der maximalen Flammengeschwindigkeit über dem Stöchiometrieverhältnis im Rohr ohne Hindernisse.

5.1.5 Druckentwicklung

Die bei Verbrennungsvorgängen in geschlossenen Behältern entstehende Druckentwicklung ist für sicherheitstechnische Fragestellungen von wichtiger Bedeutung. Die seitlich bzw. stirnseitig (d.h. reflektierend) auf die Geometrie des geschlossenen Behälters einwirkenden Drücke stellen die zeitlichen und örtlichen Randbedingungen für numerische Codes dar, die Strukturantworten und mechanische Belastungen berechnen und somit eine Aussage über die maximale Belastung des Behälters zulassen. Die auf kreisrunde, geschlossene Rohre mechanischen Belastungen infolge Stoßwellen und Detonationen wurden beispielsweise von Beltman und Shepherd [BS99] experimentell und numerisch bestimmt.

Die in einem geschlossenen Behälter lokal auftretenden Druckbelastungen sind mitunter sehr komplex und können nicht mit den zwei Verbrennungsphänomenen der Deflagration sowie der Detonation klassifiziert werden. Vielmehr erfordert die sicherheitstechnische Beurteilung von geschlossenen Behältern eine sehr differenzierte Betrachtungsweise, um vorab die in einer Gemischzusammensetzung maximal auftretenden Druckbelastungen zu ermitteln. Ausschlaggebend für die Sicherheitsbeurteilung ist neben

dem Maximaldruck die Zeitspanne, über welcher der Druck an einer Struktur anliegt. Eine Quantifizierung erfolgt über die Impulsberechnung, siehe Seite 139.

Abbildung 5.30 zeigt eine Verteilung der im Rahmen dieser Arbeit experimentell beobachteten reflektierten Spitzendrücke am Endflansch der Versuchsanlage aller untersuchter Hinderniskonfigurationen in Abhängigkeit der Gemischzusammensetzung sowie der gemittelten Flammengeschwindigkeit im Bereich des letzten Rohrabschnittes ($x=5.5 - 6.5$ m). Die maximal auftretenden Drücke entstehen nicht bei den detonativen Brennregimes, sondern vielmehr bei Flammengeschwindigkeiten, die dem Regime

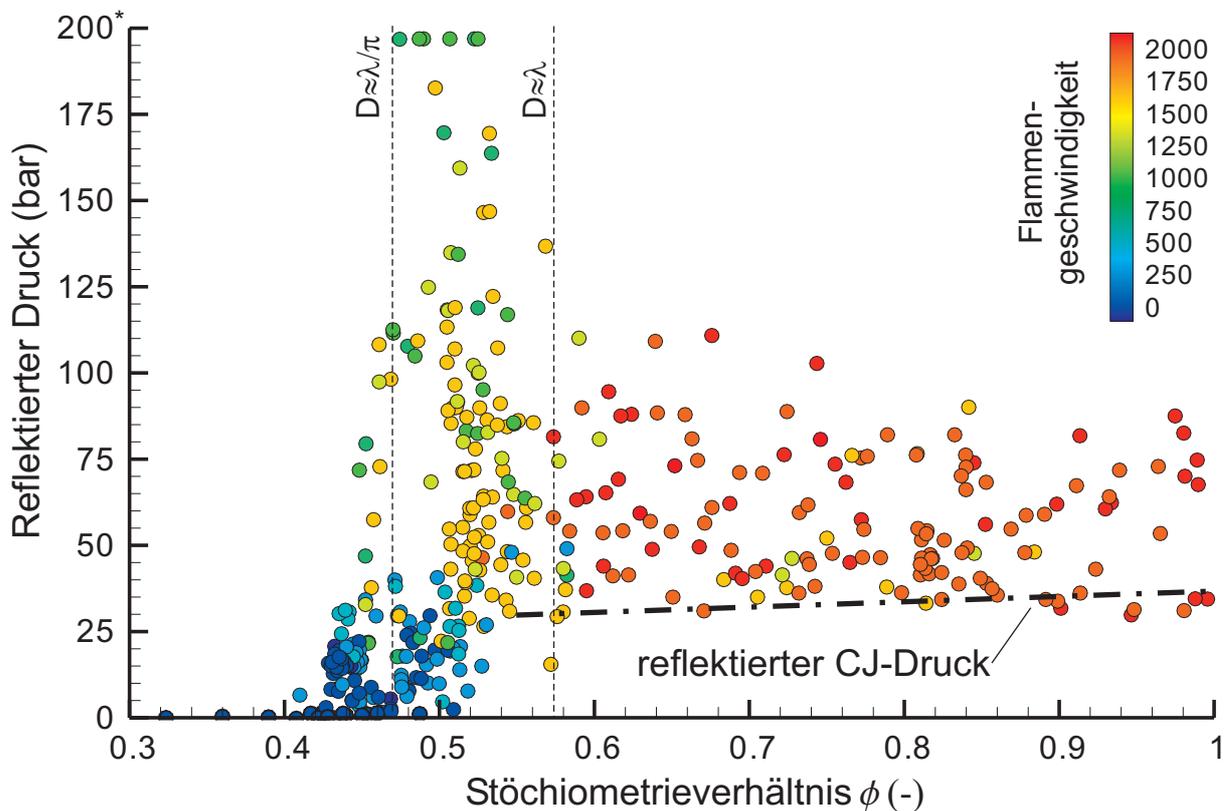


Abbildung 5.30: Verteilung der reflektierten Spitzendrücke am Endflansch der Versuchsanlage aller untersuchter Hinderniskonfigurationen in Abhängigkeit der Gemischzusammensetzung sowie der gemittelten Flammengeschwindigkeit im Bereich des letzten Rohrabschnittes ($x = 5.5$ bis 6.5 m). *: Drucksensor im Endflansch war auf 200 bar limitiert. Um eine bessere Darstellung zu ermöglichen, werden in dieser Graphik nur ein Teil der durchgeführten Versuch dargestellt.

der schallnahen, schnellen Deflagration zugeordnet werden können. Wie bereits in Kapitel 5.1.2 dargestellt, wurde dieses Brennphänomen lediglich in dem Gemischbereich $\lambda/\pi < D < \lambda$ beobachtet. Wie aus Abbildung 5.30 erkennbar, treten auch in diesem Bereich die höchsten Drücke am Endflansch auf. Die maximal gemessenen Drücke lagen dabei über 200 bar (die Drucksensoren wurden auf einen Maximaldruck von 200 bar limitiert, um eine hohe Messauflösung zu gewährleisten). Bei sensitiveren Gemischzusammensetzungen im Bereich $D > \lambda$ wurden bei den verwendeten Hindernisanordnungen nur Detonationen beobachtet, die einen Druckanstieg von 35 - 85 bar am Endflansch erzeugten. Der Grund dieser hohen Streuung bei Detonationen liegt darin, dass aufgrund der begrenzten zeitlichen Auflösung des verwendeten Messdatenerfassungssystems die VN-Druckspitze teilweise nur unvollständig oder überhaupt nicht erfasst werden konnte. Diese Druckspitze ist jedoch zeitlich gesehen so kurz, dass sie im Rahmen der sicherheitstechnischen Auslegung vernachlässigt werden kann, wodurch bei Detonationen das CJ-Druckniveau als sicherheitstechnisch relevante Druckbelastung verwendet wird. Aus Abbildung 5.30 ist des weiteren zu erkennen, dass auch Detonationen in dem Gemischbereich $\lambda/\pi < D < \lambda$ teilweise deutlich höhere Drücke am Endflansch erzeugen, verglichen zu Detonationen in Gemischen mit $D > \lambda$.

Um die in Abbildung 5.30 dargestellten Drücke und ihrer sicherheitstechnisch relevanten Auswirkungen bezogen auf ihren Impulseintrag in die Bauteilstruktur beurteilen zu können, bedarf es einer detaillierten Betrachtung der ihnen zugrundeliegenden Brennregimes. Abbildungen 5.31 und 5.32 zeigen exemplarisch charakteristische zeitliche Verläufe der sechs eingesetzten Drucksensoren im Explosionsrohr (vgl. Kapitel 4) einer Deflagration (5.31 oben), einer Detonation infolge einer Richtmyer-Meshkov Instabilität (5.31 unten), einer Detonation durch turbulente Flammenbeschleunigung in einer Hindernisstrecke (5.32 oben) sowie einer schallnahen Deflagration (5.32 unten). Zusätzlich wurden die zeitlichen Verläufe der Flammen bzw. der Druck-/Stoßwellenposition in die x-t Ebene der dreidimensionalen Diagramme projiziert.

Die Druckwellenentwicklung einer Deflagration ist, wie in Abbildung 5.31 oben dargestellt, maßgeblich durch die vorauslaufende Stoßwelle bestimmt. In diesem Fall verlässt, wie bereits bei den in Abschnitt 5.1.2 beschriebe-

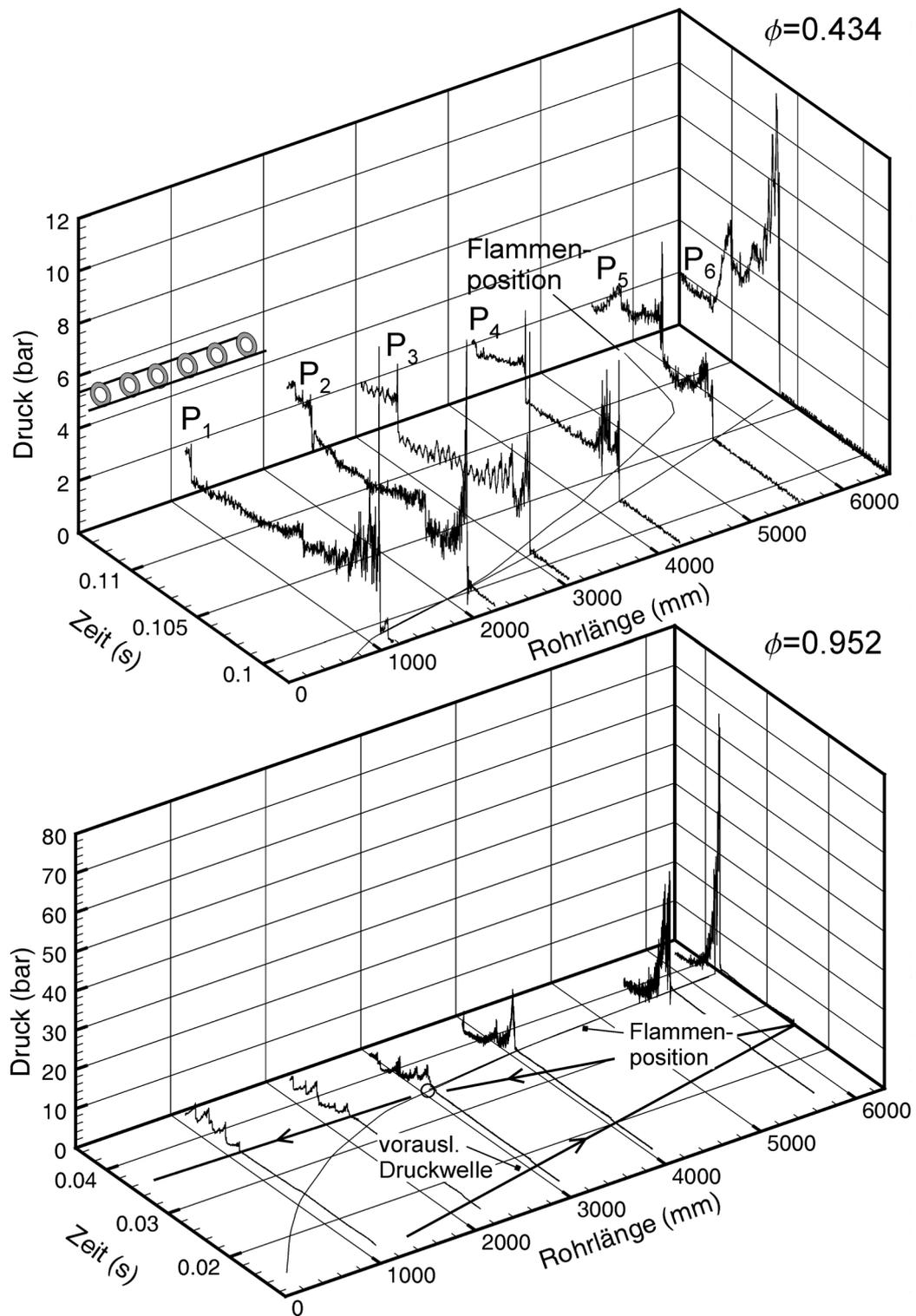


Abbildung 5.31: Zeitliche Verläufe der sechs eingesetzten Drucksensoren im Explosionsrohr einer Deflagration (oben) und einer Detonation infolge einer Richtmyer-Meshkov Instabilität (unten). P₁-P₅: Druckmessung seitlich an der Rohrwand, P₆ Druckmessung am Endflansch (reflektierend).

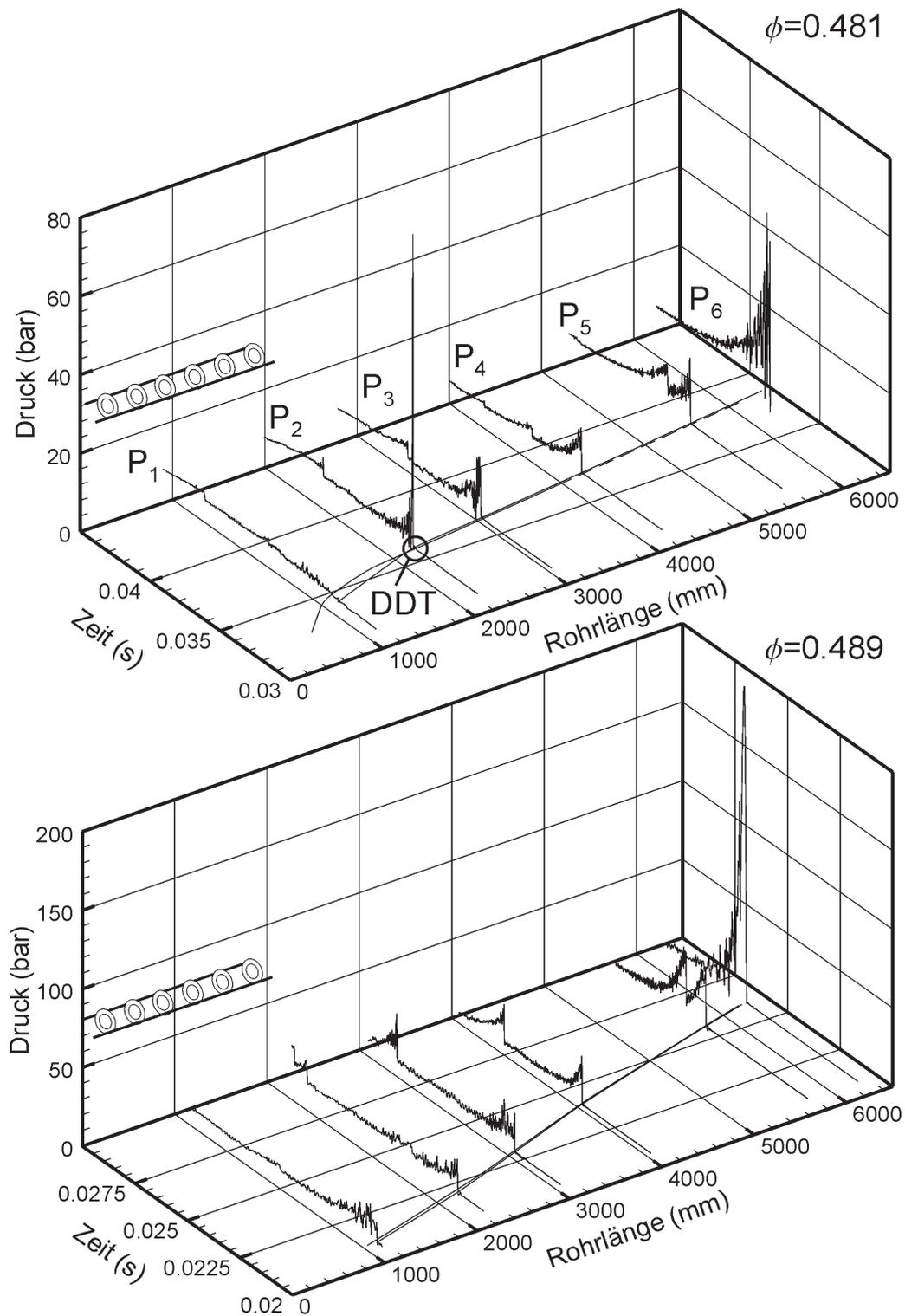


Abbildung 5.32: Zeitliche Verläufe der sechs eingesetzten Drucksensoren im Explosionsrohr einer Detonation durch turbulente Flammenbeschleunigung in einer Hindernisstrecke (oben) und einer schallnahen Deflagration (unten). P₁-P₅: Druckmessung seitlich an der Rohrwand, P₆ Druckmessung am Endflansch (reflektierend).

nen Deflagrationen, die Flamme die Hindernisstrecke unmittelbar hinter der Stoßwelle und entkoppelt sich bei einer Austrittsgeschwindigkeit von 1000 m/s. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Stoßwelle nimmt in ihrem weiteren Verlauf ab und beträgt unmittelbar vor dem Endflansch 600 m/s. Entsprechend nehmen auch die seitlichen Druckanstiege an der Rohrwand bei dem Passieren der Stoßwelle kontinuierlich ab. Wie aus Abbildung 5.31 oben deutlich hervorgeht, hat die Flamme keinen großen Einfluss auf die Druckentwicklung, wodurch im Rahmen einer sicherheitstechnischen Gefahrenabschätzung bei Deflagrationen die Druckentwicklung der führenden Stoßfront die größte Gefährdung für die Bauteilstruktur darstellt. Zu beachten ist, dass durch die Reflektion der Druckwelle am Endflansch die gegenläufige Stoßwelle teilweise erheblich größere Drücke erzeugen kann. Durch Anwendung der Rankine-Hugoniot-Beziehungen lässt sich unter der Voraussetzung, dass die Geschwindigkeit des Fluids am Endflansch unmittelbar nach der Stoßreflektion gleich Null ist, zeigen, dass der reflektierte Druck p_{RS} mit

$$p_{RS}/p_1 = 1 + \frac{\kappa_1 M_1^2 (\eta - 1) (\zeta - 1)}{\zeta - \eta}, \quad (5.2)$$

unter der Voraussetzung idealer Gase und konstantem Isentropenexponent berechnet werden kann, wobei der Zustand 1 dem ruhenden Gemischzustand und Zustand 2 dem, hinter dem einfallenden Stoß entspricht. Die Substitutionen η und ζ entsprechen

$$\eta = \frac{M_1^2 (\kappa_1 + 1)}{(\kappa_1 - 1) M_1^2 + 2} \quad (5.3)$$

$$\zeta = \frac{\eta (M_1^2 (\eta - 1) \kappa_1 + \eta)}{(M_1^2 (\eta - 1) (\kappa_1 - 1) + \eta)}, \quad (5.4)$$

wodurch sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit des reflektierten Stoßes in Abhängigkeit des einfallenden Stoßes wie folgt ergibt:

$$U_{RS} = \frac{U_S (\eta - 1)}{\zeta - \eta}. \quad (5.5)$$

Abbildung 5.31 (unten) zeigt die örtliche und zeitliche Druckentwicklung im Explosionsrohr bei der Detonationsentstehung infolge einer Richtmyer-Meshkov Instabilität. Auch hier ist deutlich zu erkennen, dass die anfangs

relativ langsame Flammenfront nahezu keinen Einfluss auf die Druckentwicklung hat. Erfolgt jedoch der Übergang in eine schnelle Deflagration, so nehmen die an der Rohrwand gemessenen Drücke den für dieses Brennregime charakteristischen Verlauf an. Die Drücke der in der Folge entstehenden Detonationsfront liegen dabei höher, verglichen zu einer Detonationsfront, die in ein ruhendes Gemisch mit thermodynamischen Initialbedingungen hineinläuft, da der CJ-Druck direkt proportional zum Druck des Gemisches vor der Flamme ist. Entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Flammenfront propagiert die reflektierte Druckwelle nach dem Passieren der gegenläufigen Flammenfront deutlich schneller durch die Energiezufuhr der Flamme während des Durchtritts. Dieses Phänomen wurde detailliert von Scarinci et al. [SLT⁺92] beschrieben.

Erfolgt der Übergang in die Detonation infolge einer turbulenten Flammenbeschleunigung nach der Hindernisstrecke und breitet sich die Detonation somit in ein ruhendes Gemisch unter thermodynamischen Initialbedingungen hinein aus, so entsprechen die beobachteten Drücke, wie in Abbildung 5.32 (oben) dargestellt, den theoretischen Werten. An dem Ort des Übergangs hingegen wurden bis zu 8-fach höhere Drücke an der Rohrwand gemessen, als sie bei Detonationsfronten auftreten. Diese hohen Drücke resultieren hier aus der lokalen Explosion des hochsensitiven Gemischbereichs zwischen Stoßwelle und Flammenfront und sind von der Art des DDT abhängig. Dieser Fall, der das Maximum der beobachteten Drücke an der Rohrwand darstellt, lässt darauf schließen, dass eine derartige lokale Explosionswelle frontal auf die Rohrwand und somit auf den Drucksensor trifft.

Wie ebenfalls in Abbildung 5.30 zu erkennen ist, lagen in dem Bereich $\lambda/\pi < D < \lambda$ die Drücke von Detonationen höher, als wie sie im Bereich $D > \lambda$ gemessen wurden. In diesem Grenzbereich kann es, je nach gewählter Hinderniskonfiguration, dazu kommen, dass sich eine Detonationsfront in ein Gemisch hineinbewegt, das bereits von schwachen, vorauslaufenden Druckwellen auf ein höheres Druckniveau versetzt wurde. Da der CJ-Druck direkt proportional zu dem Initialdruck des Brennstoff-Luft Gemisches angenommen werden kann, ergibt sich durch diese vorauslaufenden Druckwellen auch ein höherer CJ-Druck. Des Weiteren ist es auch möglich, dass der Übergang in die Detonation erst kurz vor Rohrende erfolgt, wo-

durch die Stoßwellen aus der lokalen Explosion als überkomprimierte Detonation auf den Endflansch treffen, wodurch ebenfalls höhere Drücke am Endflansch resultieren. Die höchsten Drücke am Endflansch von mehr als 200 bar wurden, wie in Abbildung 5.30 und 5.32 (unten) dargelegt, genau dann erreicht, wenn die Flamme sich bis zum Rohrende hin als schnelle Deflagration mit einer typischen mittleren Ausbreitungsgeschwindigkeit von ca. 1000 m/s ausgebreitet hat.

Deutlich höhere reflektierte Drücke, als sie bei CJ-Detonationen auftreten, wurden in Explosionsrohren ebenfalls von Zhang et al. [ZTM98] in Acetylen-Luft Gemischen sowie von Chan und Dewit [CD96] in Wasserstoff-Luft Gemischen beobachtet. Abbildung 5.33 zeigt die von Chan und Dewit in einer 6.4 m langen Versuchsanlage (Durchmesser 28 cm) ermittelten maximalen Drücke am Endflansch, wobei die Versuchsanlage über die gesamte Rohrlänge mit Hindernissen der Blockierrate $BR=30\%$ bestückt war. Chan und Dewit sowie Zhang et al. führten diese hohen Drücke auf das erstmals von Craven und Greig beschriebene und nach

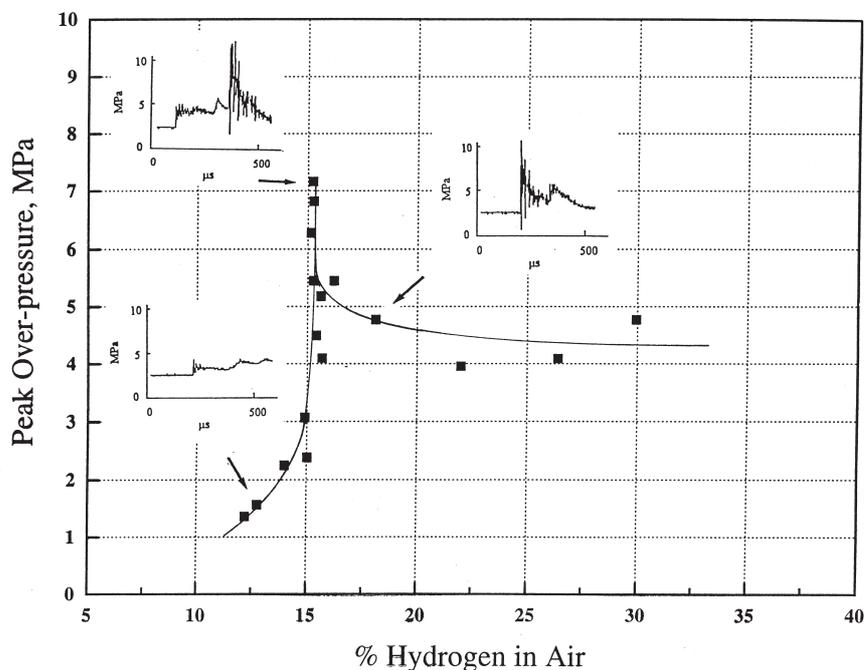


Abbildung 5.33: Reflektierter Druck am Endflansch von Wasserstoff-Luft Gemischen in einer runden, 6.4 m langen Versuchsanlage (Durchmesser: 28 cm), [CD96].

ihnen benannte DDT-Szenario zurück, vgl. Abbildung 5.34. Der vor der Flamme F_1 vorauslaufende Stoß VS wird an der Wand reflektiert und erzeugt einen reflektierten Stoß RS. Diese gegenläufige Stoßwelle läuft auf die Flamme F_2 auf, wodurch ein Übergang in die Detonation erfolgt. Die Detonationswelle D breitet sich in das stark vorkomprimierte Gemisch hinein aus und wird wiederum an der Wand reflektiert, wodurch am Endflansch sehr hohe Drücke entstehen.

Dieses Szenario setzt jedoch voraus, dass ein DDT infolge einer Richtmyer-Meshkov Instabilität entsteht. Wie bereits oben dargestellt, wurde diese Art des Übergangs nur bei langsamen Flammengeschwindigkeiten beobachtet. Bei schnellen Deflagrationen erfolgte stets eine Flammenlöschung bzw. eine Verlangsamung der Ausbreitungsgeschwindigkeit. Des weiteren, wie aus den Druckschrieben von Abbildung 5.33 erkennbar ist, kann in diesem Fall die reflektierte Stoßwelle zeitlich von der reflektierten Detonationswelle differenziert werden.

Die im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit ermittelten reflektierten Drücke zeigen einen ähnlichen Verlauf über dem Stöchiometrieverhältnis (siehe Abbildung 5.30), jedoch weisen sie einen ca. 3- bis 4-fach höheren

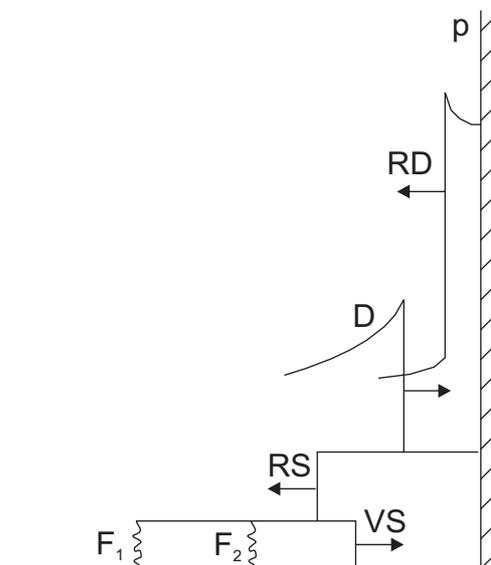


Abbildung 5.34: Druckniveaus bei einem Craven-Greig DDT-Szenario. F_1 : Flammenfront zum Zeitpunkt t_0 ; VS: Vorauslaufende Stoßwelle von F_1 ; F_2 : Flammenfront zum Zeitpunkt $t_0 + \delta t$; RS: Reflektierte Stoßwelle; D: Detonation; RD: Reflektierte Detonation.

Druck auf als von Chan und Dewit beobachtet. Im Gegensatz zu der Arbeit von Chan und Dewit konnte bei den Druckverläufen keine zeitliche Differenzierung zwischen der vorauslaufenden Stoßwelle und der Ankunftszeit der Flamme am Endflansch beobachtet werden. Vielmehr ergab sich ein singulärer starker Druckanstieg. Dies lässt darauf schließen, dass hier ein anderer Mechanismus für den Druckanstieg verantwortlich ist, der wie folgt erklärt werden kann:

Nimmt man als das relevante Druckniveau einer Detonation den CJ-Druck unmittelbar hinter der Front an, so lassen sich die maximal in einem Detonationsrohr entstehenden Drücke durch das Craven-Greig Szenario berechnen. Abbildung 5.35 zeigt die, bei einem Craven-Greig Szenario theoretisch erreichbaren Drücke an einem Endflansch in Abhängigkeit der Machzahl des voranlaufenden Stoßes für ein Wasserstoff-Luft Gemisch mit $\phi = 0.488$, was eine charakteristische Gemischzusammensetzung für das Auftreten dieser hohen Drücke in der verwendeten Versuchsanlage darstellt.

Geht man von der maximal im Rahmen dieser Arbeit beobachteten, deflagrativen Ausbreitungsgeschwindigkeit von $u_F \approx 1100$ m/s ($Ma \approx 3$) aus, so sind theoretisch reflektierte Drücke von 320 bar am Endflansch reali-

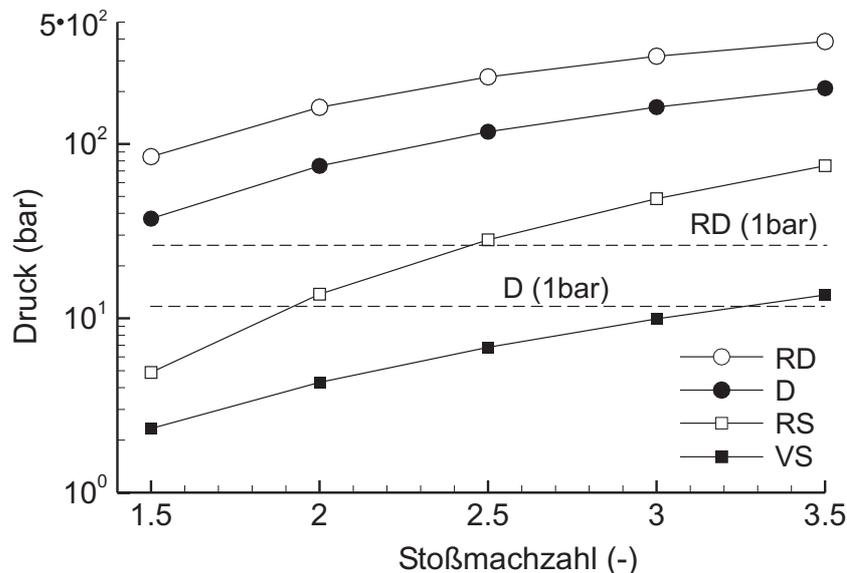


Abbildung 5.35: Theoretisch erreichbare Drücke bei einem Craven-Greig Szenario am Endflansch in Abhängigkeit der Machzahl des voranlaufenden Stoßes für ein Wasserstoff-Luft Gemisch mit $\phi = 0.488$.

stisch. Nach der Reflektion des einfallenden Stoßes liegt bereits ein stark zündfähiges Gemisch vor, das sich in Ruhe befindet und nach einer Induktionszeit τ_{ind} von selbst zündet noch bevor die Detonationswelle den Endflansch erreicht. Die Zeitspanne τ_{CG} , beginnend von dem Moment, an dem die reflektierte Druckwelle RD den Endflansch verlässt bis zum Eintreffen der Detonationswelle D, lässt sich wie folgt berechnen:

$$\tau_{CG} = \frac{\delta(u_D + u_{RS})}{u_D(u_{RS} + u_F)}. \quad (5.6)$$

Als Voraussetzung für das Eintreten eines Craven-Greig Szenarios muss

$$\tau_{CG} < \tau_{ind} \quad (5.7)$$

gelten. Nimmt man an, dass die Flammenfront die gleiche Geschwindigkeit wie die Stoßwelle hat, so lässt sich aus dieser Abschätzung der maximale Abstand δ zwischen Stoßwelle und Flamme berechnen, damit eine Craven-Greig Detonation eintreten kann. Abbildung 5.36 zeigt den Verlauf der Induktionszeit τ_{ind} des Gemisches (berechnet mit dem Lutz-Mechanismus [LKM⁺88]) nach der Reflektion der vorauslaufenden Stoßwelle sowie den damit möglichen, maximalen Abstand δ zwischen Stoßwelle und Flamme.

Für den Fall der in Abbildungen 5.13 (Seite 100) dargestellten schnellen Deflagration betrug der Abstand zwischen Stoß und Flamme ca. 10 cm. Für eine sich mit $Ma = 3$ ausbreitenden Flammenfront ist dies genau der Abstand, an dem die Selbstzündung am Endflansch eintritt. Dies lässt den Schluss zu, dass die im Rahmen dieser Arbeit beobachteten hohen Drücke dadurch entstehen, dass “direkt” am Endflansch ein DDT entsteht. Die reflektierte Stoßwelle hinterlässt ein hochsensitives Gemisch, in dem eine örtliche Verteilung an Gradienten der Induktionszeit vorherrscht. Dies bildete die optimale Voraussetzung für einen SWACER Mechanismus. Die auf die schnelle Deflagration auftreffende, reflektierte Stoßwelle kann zwar keinen DDT durch die Richtmyer-Meshkov Instabilität auslösen, jedoch erfolgt ein sehr schneller Abbrand dieses hochsensitiven Gemischvolumens mit sukzessiver Verstärkung der Reaktionsfront, der zu diesen hohen Drücken führt.

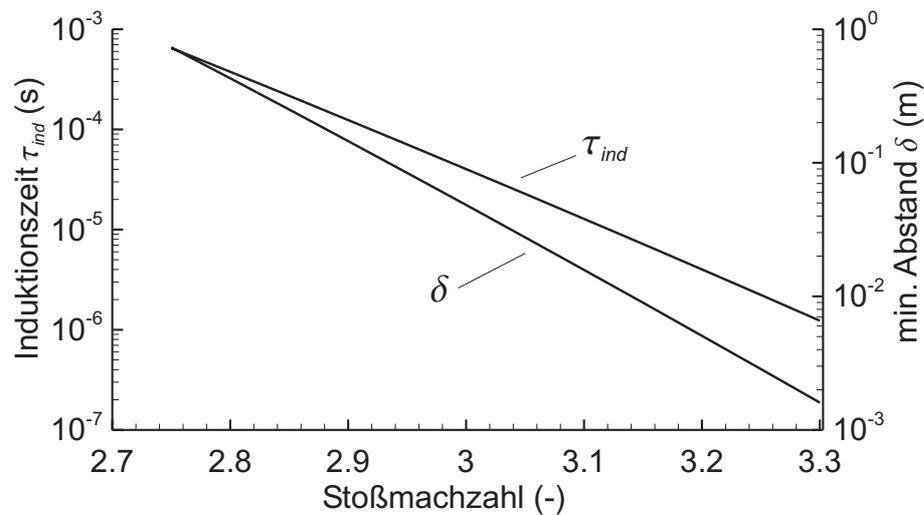


Abbildung 5.36: Verlauf der Induktionszeit τ_{ind} des Gemisches nach Reflektion der vorauslaufenden Stoßwelle und daraus berechneter minimal möglicher Abstand δ zwischen Stoßwelle und Flamme zur stoßinduzierten Zündung in Abhängigkeit der Stoßmachzahl.

Abbildung 5.37 zeigt einen detaillierten Vergleich der auftretenden Druckbelastung zwischen einer derartigen schnellen Deflagration und einer CJ-Detonation. Aufgrund der Begrenzung der Druckaufnehmer (siehe oben) konnte nur ein Maximaldruck von 200 bar ermittelt werden. Extrapoliert man die auf- und absteigenden Flanken der Druckspitze, so ergibt sich ein Maximaldruck im Bereich zwischen 250 und 300 bar. Neben dem höheren Druck ist auch die auf den Endflansch einwirkende Zeit des hohen Druckes

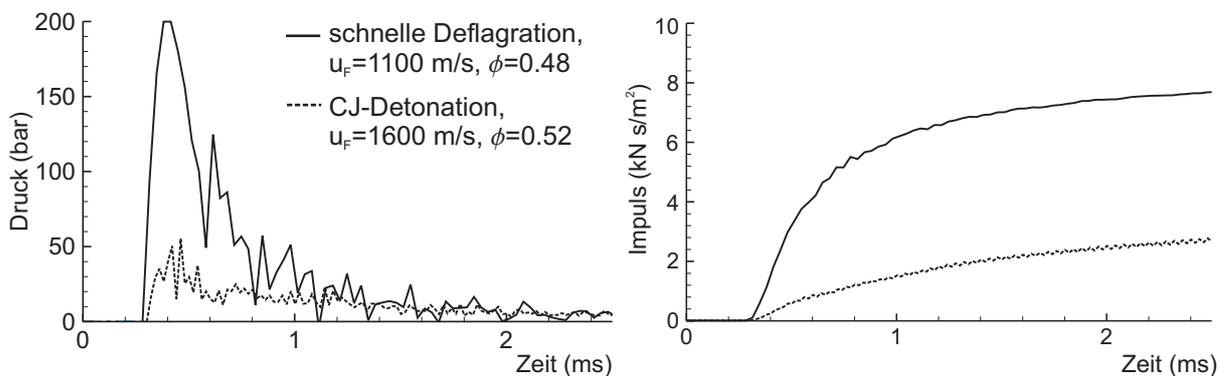


Abbildung 5.37: Vergleich einer Detonation mit einer schnellen Deflagration im zeitlichen reflektierten Druckverlauf (links) und dem Impulsverlauf (rechts) am Endflansch.

größer, verglichen zu einer CJ-Detonation. Besonders deutlich wird dies, wenn man die Impulsverläufe der beiden Druckschriebe vergleicht, die wie folgt berechnet wurden:

$$I = \int_0^t p dt . \quad (5.8)$$

Bei Detonationen ergeben sich typische Impulswerte in der Höhe von 2 kN s/m^2 , wie sie auch von Slezak [Sle90] ermittelt wurden. Durch den höheren Druck und auch durch die längere Zeit, in der der Maximaldruck anliegt, stellt sich im Fall einer schnellen Deflagration bereits nach einer Zeit von 1 ms ein um den Faktor 4 höherer Impulseintrag in die Festkörperstruktur ein.

5.1.6 Untersuchung von Wandwärmeströmen von Deflagrationen und Detonationen

Ein wichtiger Parameter bei der Untersuchung von transienten Verbrennungsvorgängen ist die Wärmemenge, die im zeitlichen Verlauf des Verbrennungsprozesses an die Behälterwand übertragen wird. Die über die Behälterwand abfließende Wärmemenge ändert beispielsweise die Temperatur und somit auch die Dichte des verbrannten Gases, was wiederum eine Auswirkung auf die Flammenbeschleunigung hat. Um die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse mit Hilfe numerischer Verfahren detailliert nachbilden zu können, wurde der in Kapitel 4 beschriebene Wärmestromsensor eingesetzt, um die hochtransienten Wärmeströme zeitlich differenziert quantifizieren zu können. Dieser Parameter ist in numerischen Verfahren durch Wahl adäquater Randbedingungen sehr gut geeignet, um die berechneten Ergebnisse validieren zu können.

Man kann davon ausgehen, dass die mittlere Temperaturänderung des Versuchsbehälters während eines Experiments aufgrund der nur kurzen Versuchsdauer von nur wenigen Millisekunden vernachlässigt werden kann [Ard98]. Durch die hohen Temperaturdifferenzen zwischen dem Abgas und der Rohrwand und den lokal teilweise sehr großen Wärmeübergangskoeffizienten – z.B. durch hochturbulente Strömungen

hinter Stoßwellen ($Re \approx 10^6 - 10^7$) oder den an der Rohrwand kondensierenden Wasserdampf – wird dem Gasgemisch die während des Verbrennungsprozesses zugeführte Reaktionsenthalpie sehr schnell wieder entzogen.

Abbildung 5.38 zeigt den Verlauf der Wärmestromdichte für eine Deflagration (links) sowie für eine Detonation (rechts). Die sich mit ca. 800 m/s ausbreitende Stoßwelle versetzt das Gemisch in einen thermodynamischen Zustand von $p \approx 5.2$ bar sowie eine Temperatur von $T \approx 525$ K. Die Fluidgeschwindigkeit beträgt unmittelbar nach dem Stoß $u = 523$ m/s, was bezogen auf den lokalen thermodynamischen Zustand $Ma = 1.05$ entspricht. Bezogen auf diesen Zustand ergibt sich hinter der Stoßwelle ein lokaler Wärmeübergangskoeffizient α von ca. $2 - 3 \times 10^3$ W/(m²K). Die Wärmestrahlung der Flammenfront kann dabei aufgrund des vorwiegend im UV-Bereich liegenden Emissionsspektrums vernachlässigt werden und muss erst für den heißen Wasserdampf im Abgas berücksichtigt werden. Nach dem Stoß nimmt der momentan übertragene Wärmestrom um den Faktor 3 ab. Zum einen sinkt innerhalb dieser Zeitspanne der Druck auf einen Wert von $p = 2.1$ bar ab, wodurch die Gastemperatur und somit auch der übertragbare Wärmestrom sinkt. Zum anderen hängt der Wärmeübergangskoeffizient von der lokalen Reynoldszahl ab, die aufgrund

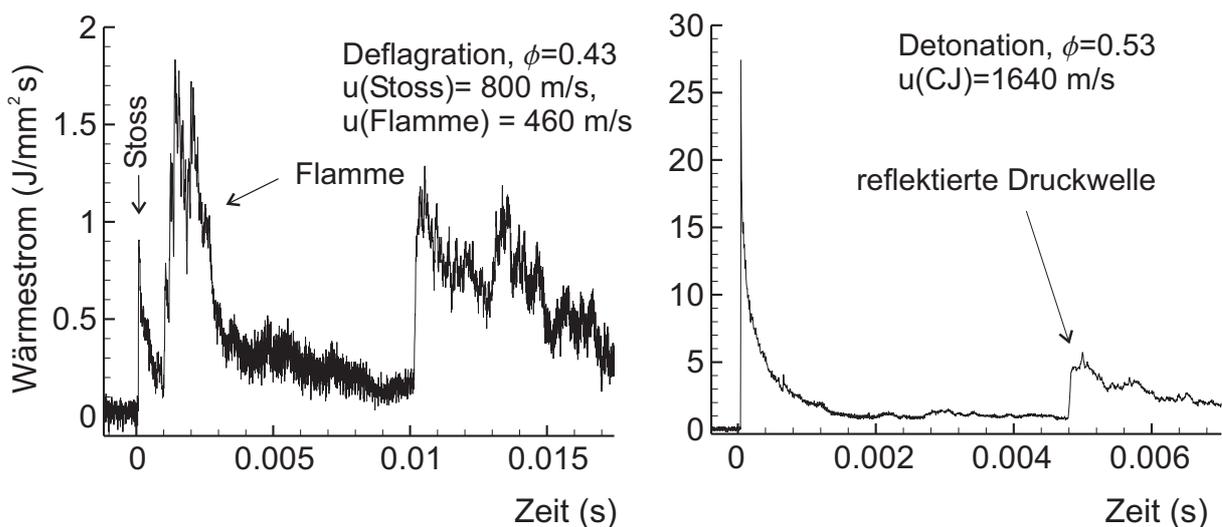


Abbildung 5.38: Wandwärmestromdichte einer Deflagration (links) und einer Detonation (rechts), zeitliche Auflösung: 300 kHz; aktive Sensorfläche: 6×3 mm.

der sinkenden Fluidgeschwindigkeit hinter der Stoßwelle ebenso stark abnimmt.

Ausgehend von diesem thermodynamischen Zustand ergibt sich bei einer isobaren Verbrennung eines Wasserstoff-Luft Gemisches von $\phi = 0.5$ eine Flammentemperatur von $T \approx 1700$ K, wodurch sich, bezogen auf die Sensorfläche, eine maximale Wärmestromdichte von $\dot{Q} = 1.8$ J/(mm²s) einstellt. Der Wärmestrom nimmt jedoch nach der Flammenfront wieder stark ab, was darauf schließen lässt, dass sich das Gas hinter der Flammenfront rasch abkühlt.

Bei detonativen Verbrennungsvorgängen hingegen beträgt der maximal lokal zur Rohrwand hin übertragene Wärmestrom den 15-fachen Wert, verglichen zu einer deflagrativen Flammenfront bei vergleichbaren Gemischzusammensetzungen. Die Spitzentemperatur einer CJ-Detonation, wie sie in Abbildung 5.38 (links) dargestellt ist, beträgt $T = 2260$ K hinter der Reaktionsfront. Jedoch lässt sich dieser hohe Wärmeübergang nicht alleine mit dieser berechneten Temperatur erklären. Vielmehr liegt hinter einer Detonationsfront, wie auch von Shepherd [She99] und White [Whi61] beschrieben, ein hochkomplexes und stark turbulentes Strömungsfeld vor, das den lokalen Wärmeübergangskoeffizienten im Vergleich zu einer Deflagration erheblich erhöht. Zum anderen erhöhen die Transversalwellen hinter der Detonationsfront die Flammen- und Abgastemperatur noch weiter, gerade wenn sie an der Wand reflektiert werden.

Betrachtet man die Gesamtenergiebilanz unter der Voraussetzung, dass die gesamte freiwerdende Reaktionsenthalpie an die Behälterwand abgegeben wird und sich dessen Temperatur nur geringfügig ändert, so muss für Deflagrationen als auch für Detonationen der integrale über die Sensorfläche abgeflossene Wärmestrom dem flächenmäßigen Anteil der Reaktionswärme entsprechen. Abbildung 5.39 zeigt den integrierten Wärmestrom der in Abbildung 5.38 dargestellten Verbrennungsprozesse.

Der Wärmestrom der Detonation ist anfangs stets größer im Vergleich zur Deflagration aufgrund der oben aufgezeigten Effekte. Jedoch, nach einer Zeit von ca. 1 s, nehmen Deflagration und Detonation den gleichen Verlauf an.

Geht man davon aus, dass das Abgas wieder auf die Ausgangstemperatur

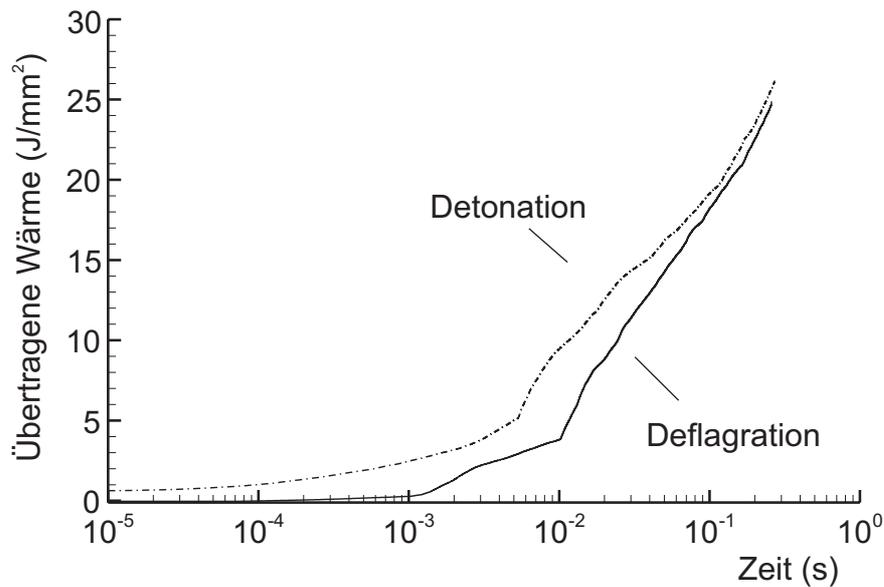


Abbildung 5.39: Integrierte Wärmestromdichte einer Deflagration sowie einer Detonation über einer Fläche von 6×3 mm.

des Gemisches abgekühlt ist und somit das bei der Reaktion entstandene Wasser flüssig vorliegt (These konnte auch durch die Druckmessung vor und nach dem Experiment bestätigt werden), so müsste über die Sensorfläche ein Wärmestrom von ca. 0.6 J abgeflossen sein. Am Ende der Aufzeichnungsdauer (1 s nach Zündung des Gemisches) wurde dieser Wert bereits erreicht. Da man davon ausgehen kann, dass zu diesem Zeitpunkt das Gemisch noch nicht ganz auf die Ausgangstemperatur abgekühlt ist und der Wasserdampf noch nicht vollständig auskondensiert ist, muss man annehmen, dass der Wärmestrom von dem Sensor geringfügig überschätzt wird. Es lässt sich jedoch feststellen, dass die mit dem Sensor integral bestimmten Werte in der Größenordnung mit den theoretischen Werten übereinstimmen, was den Einsatz dieses Meßsystems bei hochtransienten Verbrennungsvorgängen mit hinreichender Genauigkeit bestätigt.

5.1.7 Zusammenfassende Darstellung der Erkenntnisse zum Brennverhalten vorgemischter Wasserstoff-Luft Flammen

Die vorangegangenen Abschnitte haben gezeigt, dass das Brennverhalten von schnellen Deflagrationen und Detonationen von vielen Faktoren

abhängen kann, die nicht ohne weiteres eine Klassifizierung des Verbrennungsablaufs in Abhängigkeit der Gemischzusammensetzung erlauben. Die im Rahmen dieser Arbeit beobachteten Verbrennungsabläufe sowie Kriterien zu ihrer Unterscheidung anhand der geometrischen Randbedingungen sowie der Gemischzusammensetzung sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst.

Die Flammenbeschleunigung in der Hindernisstrecke bestimmt entscheiden den Verbrennungsablauf im Explosionsrohr. Dabei ist neben dem Stöchiometrieverhältnis ϕ die Geometrie der Hindernisstrecke (ausgedrückt durch die Blockierrate BR der verwendeten Hindernisse, dem Abstand zwischen den einzelnen Hindernissen l_{SP} und der Gesamtlänge der Hindernisstrecke L_{OP}) von entscheidender Bedeutung. Für das Brennverhalten im unblockierter Rohrabschnitt nach der Hindernisstrecke ist, neben dem Brennverhalten der Flamme in der Hindernisstrecke, insbesondere die Detonationszellweite λ entscheidend. Anhand dieser beiden Kriterien kann, wie in Tabelle 5.3 gezeigt, entschieden werden, ob ein Übergang in die Detonation eintreten kann.

In der Hindernisstrecke wurden folgende drei verschiedene Brennverhalten beobachtet: *Deflagrationen*, *schnelle Deflagrationen* und *Quasidetonationen*. *Deflagrationen*, deren Ausbreitungsgeschwindigkeit unter der isobaren Schallgeschwindigkeit lagen, wurden für alle Hinderniskonfigurationen beobachtet, sofern das Stöchiometrieverhältnis unter $\phi = 0.4$ lag. Für Gemische mit höheren Brennstoffanteilen wurden Deflagrationen nur beobachtet, wenn die in Tabelle 5.3 aufgeführten geometrischen Bedingungen erfüllt waren. *Schnelle Deflagrationen* und *Quasidetonationen* breiten sich in der Hindernisstrecke mit einer mittleren Geschwindigkeit zwischen der isobaren Schallgeschwindigkeit und der Chapman-Jouguet (CJ) Detonationsgeschwindigkeit aus. Im Gegensatz zur normalen Deflagration muss als geometrische Voraussetzung die Bedingung erfüllt sein, dass der Hindernisabstand um den Faktor 1.5 größer ist als der Rohrdurchmesser D und die Hindernisse eine Blockierrate BR von maximal 60% aufweisen.

Im *unblockierten Rohr nach der Hindernisstrecke* kann sich die Flamme in Abhängigkeit des Brennregimes in der Hindernisstrecke sowie der gemischabhängigen Detonationszellweite als *langsame Deflagration*, *schnelle Deflagration*, *Marginal-Detonation* und *planare Detonation* ausbreiten. Liegt die Detonationszellweite über dem minimal erforderlichen Wert

Tabelle 5.3: Zusammenfassung der beobachteten Verbrennungsabläufe.

Rohr mit Hindernissen			
In der Hindernisstrecke	Im unblockierter Rohrabschnitt		refl. Drücke
Deflagration: Geschwindigkeit bis isobare Schallgeschwindigkeit <i>Kriterium:</i> $\phi < 0.4$ für alle Hindernisse $\phi > 0.4$ für $l_{SP} \leq D$ und $d \leq \lambda$	$\lambda > D$	Verlangsamung, evtl. Löschung (Quenching) durch Gegenströmung einer reflektierten Druckwelle	< 10 bar
	$\lambda < D$	Flamme beschleunigt weiter und geht im unblockierten Rohr in planare Detonation über	25-75 bar
schnelle Deflagration bzw. Quasidetonation: Geschw. gleich isobarer Schallgeschw. oder größer <i>Kriterium:</i> $\phi > 0.4$ für $l_{SP} > D$ und $BR \leq 60\%$	$\lambda/\pi > D$	Verlangsamung, evtl. Löschung (Quenching) durch Gegenströmung einer reflektierten Druckwelle	< 10 bar
	$\lambda/\pi > D$ u. $D > \lambda$	3 Möglichkeiten , s. Abb. 5.12 1. langsame Deflagration 2. schnelle Deflagration (mit hoher Druckentwicklung bei Reflektion) 3. Marginal-Detonation (Spindetonation, Detonation mit Taschenbildung)	< 10 bar > 200 bar
	$\lambda < D$	planare Detonation	25-125 bar
Rohr ohne Hindernissen			
Brennverhalten	Kriterium/Beschreibung		refl. Drücke
langs. Deflagration: Flammengeschwindigkeit bis max. 100 m/s	$\phi < 0.7$	Flamme breitet sich mit langsamer Geschwindigkeit aus, Verlangsamung und Löschung durch Gegenströmung hinter reflektierter Druckwelle möglich	< 10 bar
schnelle Deflagration u. planare Detonation: Flammengeschwindigkeit zwischen isobarer Schallgeschwindigkeit und CJ-Detonation	$\phi > 0.7$	Flammenbeschleunigung auf isobare Schallgeschwindigkeit (schnelle Deflagration) und Übergang in CJ-Detonation durch Richtmyer-Meshkov Instabilität	25-150 bar

für die Ausbreitung einer Spindetonation ($\lambda > D/\pi$), so breitet sich die Flamme als *langsame Deflagration* im unblockierten Rohrabschnitt weiter aus. Da die der Flamme vorauslaufende Stoßwelle das Rohrende deutlich eher erreicht und dort reflektiert wird, kommt es bei der

Kollision der Flamme mit der gegenläufigen Druckwelle durch die Gegenströmung hinter der Druckwelle zu einer Verlangsamung der Flamme bzw. zu einer vollständigen Löschung (*Quenching*). Im Bereich der *Marginal-Detonationen* ($\lambda/\pi > D > \lambda$) erfolgt nur ein DDT-Prozess, wenn bereits in der Hindernisstrecke eine Quasidetonation vorliegt. Ein Charakteristikum dieser Marginal-Detonationen ist, dass sich Taschen von unverbrauchtem Frischgas hinter der Reaktionsfront ausbilden. Ebenso konnte in diesem Bereich beobachtet werden, dass die Reaktionsfront die gleiche Geschwindigkeit wie in der Hindernisstrecke bis zum Rohrende beibehält (*schnelle Deflagration*). Dabei entstehen die höchsten reflektierten Drücke am Endflansch des Explosionsrohres von mehr als 200 bar. Ein Übergang in eine stabile, *planare Detonationsfront* erfolgt nur, wenn in der Hindernisstrecke eine schnelle Deflagration oder eine Quasidetonation vorliegt und sich im unblockierten Explosionsrohr mindestens eine Detonationszelle ausbilden kann ($\lambda < D$).

Trifft *im Rohr ohne Hindernisse* eine langsame Flamme ($u_F < 100$ m/s) auf eine schwache, am Endflansch reflektierte Druckwelle der Geschwindigkeit $Ma \approx 1$, so entsteht infolge einer *Richtmyer-Meshkov Instabilität* eine starke Flammenbeschleunigung bis zu der isobaren Schallgeschwindigkeit, bei welcher ein Übergang in die Detonation erfolgt. Die Voraussetzung dafür ist, dass das Stöchiometrieverhältnis größer als $\phi = 0.7$ ist. Es lässt sich analytisch zeigen, dass die Reaktionsrate umso mehr zunimmt, je geringer die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Deflagration vor der Kollision zwischen reflektierter Druckwelle und Flamme ist.

5.2 Einfluss des thermodynamischen Anfangszustands auf den DDT

Die in dem vorangegangenen Abschnitt dargestellten Erkenntnisse dienen vorwiegend dem Zweck, die grundlegenden Mechanismen für die Ausbreitung schallnaher und überschall-schneller Flammenfronten zu erklären. Als thermodynamischer Initialzustand wurde dabei eine Temperatur von $T \approx 293$ K und ein Druck von $p \approx 1.0$ bar gewählt, um eine möglichst hohe Reproduzierbarkeit der Versuche zu erlangen sowie die Erkenntnisse mit denen aus der Literatur vergleichen zu können. Jedoch gerade der

thermodynamische Anfangszustand eines Brennstoff-Luft Gemisches kann erhebliche Folgen auf den Brennverlauf und dessen sicherheitsrelevanten Folgen haben. Man kann davon ausgehen, dass die Mechanismen der Flammenausbreitung im Prinzip zu denen, dargestellt in Kapitel 5.1, identisch sind. Jedoch ist nicht hinreichend geklärt, inwieweit sich die Grenzen für den Übergang von der Deflagration in die Detonation durch eine Änderung des thermodynamischen Anfangszustands verschieben.

Durch Erhöhung der Temperatur des Ausgangszustandes steigt die laminare Brenngeschwindigkeit des Gemisches nach Gleichung (2.15). Die Flamme beschleunigt daher schneller auf die, für den DDT erforderliche isobare Schallgeschwindigkeit, die sich wiederum mit der Temperatur nur geringfügig erhöht (z.B. bei einer Erhöhung der Anfangstemperatur von 293 K auf 373 K ändert sich die isobare Schallgeschwindigkeit um durchschnittlich 10 m/s). Negativ auf die Flammenbeschleunigung wirkt sich hingegen das geringere Expansionsverhältnis σ bei höheren Temperaturen aus. Abbildung 5.40 zeigt den Einfluss der Ausgangstemperatur sowie des Ausgangsdrucks auf das Expansionsverhältnis.

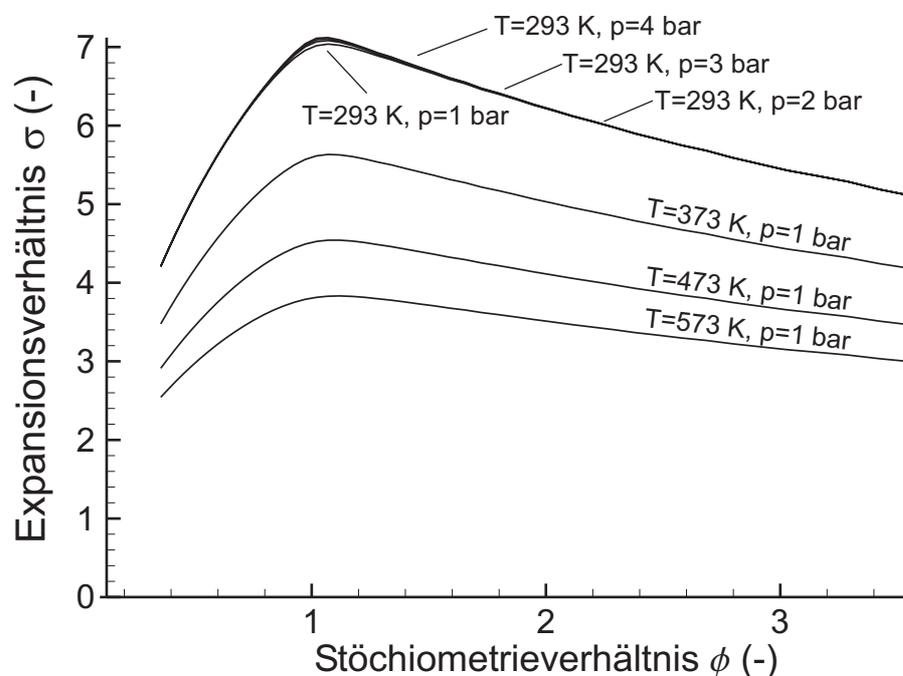


Abbildung 5.40: Expansionsverhältnisse für Wasserstoff-Luft Gemische unter erhöhtem Anfangsdruck und Temperatur, berechnet mit STANJAN.

Obwohl das Expansionsverhältnis mit steigender Temperatur stark abnimmt, liegen die Werte bis zu einer Anfangstemperatur von $T = 573$ K immer noch über dem erforderlichen empirischen Schwellwert (siehe Kapitel 2), der eine ausreichende Beschleunigung der Flammenfront bis zu der isobaren Schallgeschwindigkeit zulässt. Im Gegensatz zu einer Temperaturerhöhung bleibt bei einer Druckerhöhung das Expansionsverhältnis nahezu identisch. Berücksichtigt man die – wenn auch geringfügige – Erhöhung der laminaren Brenngeschwindigkeit mit steigendem Druck (siehe Gleichung (2.16)), so stellen Gemische unter hohem Druck und Temperaturen zwischen $T = 300$ und 400 K den optimalen Bereich für eine hohe Flammenbeschleunigung dar.

Abbildung 5.41 zeigt die Messung der maximalen Flammengeschwindigkeiten von Wasserstoff-Luft Gemischen unter erhöhtem Anfangsdruck ($p = 2$ bar und erhöhter Anfangstemperatur ($T = 385$ K)). Wie an den Geschwindigkeitsniveaus zu erkennen ist, hat der thermodynamische Zustand des Initialgemisches bis $T = 385$ K und $p = 2$ bar keinen Einfluss auf die effektiven Flammengeschwindigkeiten. Ebenso ist die CJ-Geschwindigkeit nur

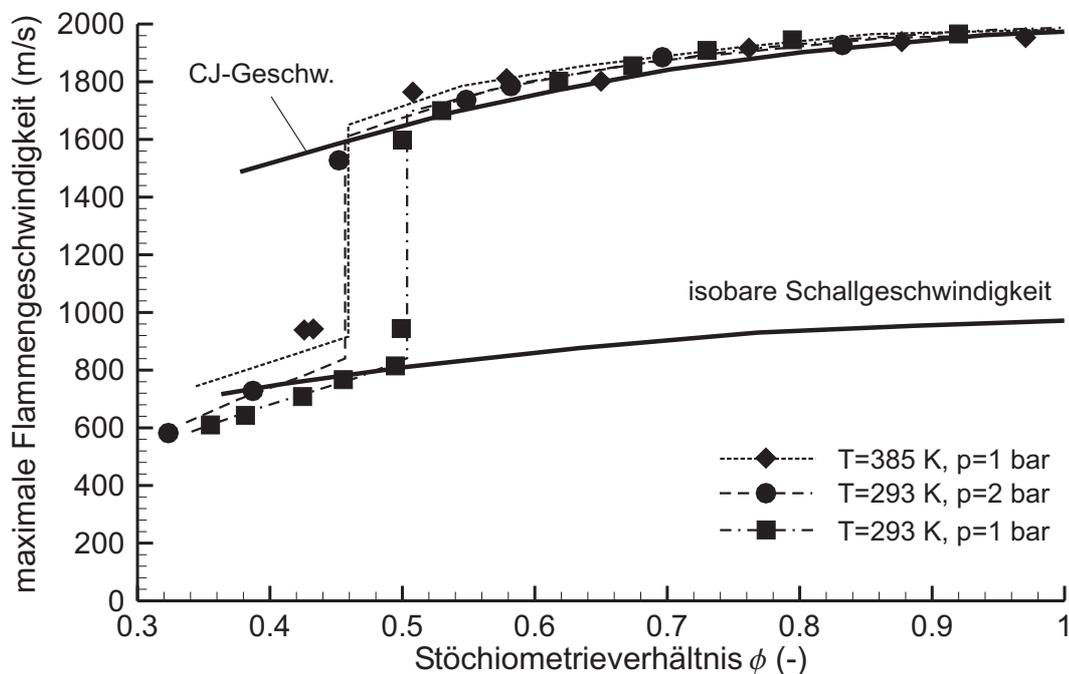


Abbildung 5.41: Maximale Flammengeschwindigkeit von Wasserstoff-Luftgemischen unter erhöhtem Anfangsdruck und erhöhter Anfangstemperatur, beschleunigt mit der Hinderniskonfiguration “60-185-2000”.

von der Gemischzusammensetzung und nicht von dem thermodynamischen Anfangszustand abhängt.

Jedoch ist deutlich zu erkennen, dass in beiden Fällen der Übergang in die Detonation bereits bei weniger sensitiven Gemischen erfolgt. Die Größe der Detonationszellweiten für Gemische mit höheren Temperaturen und Drücken sind nach wie vor Gegenstand der Diskussion. Ciccarelli et al. [CGB⁺94, CGB⁺97] konnten in Messungen zeigen (siehe Abbildung A.2, Seite 181), dass mit zunehmender Temperatur auch die Detonationszellweite bis zu Temperaturen von $T = 650$ K – wenn auch nur geringfügig – abnimmt. Diese nur geringfügige Abnahme der Detonationszellweiten lässt sich auch theoretisch herleiten: Mit zunehmender Anfangstemperatur steigt auch die Temperatur im VN-Zustand. Da die Reaktionsraten eine exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur besitzen, nimmt die Induktionszeit τ_i ab. Jedoch nimmt auch mit steigender Temperatur die Detonationsmachzahl ab, wodurch der VN-Druck niedriger ist. Dies stellt wiederum einen gegenläufiger Effekt zu dem Temperatureinfluss dar. Die Abhängigkeit der Detonationszellweiten von dem Anfangsdruck ist nur bis zu Drücken von $p = 2$ bar geklärt, siehe Abbildung A.3 (Seite 181).

5.3 Einfluss von Additiven auf den DDT in Wasserstoff-Luft Gemischen

In Störfallszenarien finden sich häufig neben dem hauptsächlich freigesetzten Wasserstoff auch kleinere Anteile von anderen Gasen, die mitunter den Verbrennungsablauf von reinen Wasserstoff-Luft Gemischen erheblich beeinflussen können. Der Einfluss von Wasserdampf auf den DDT wurde bereits von Brehm [Bre87] bei Temperaturen von $T = 353$ K ausführlich untersucht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde deshalb der Einfluss von Wasserdampf nur insoweit untersucht, um eine abgesicherte Vergleichsbasis zu den anderen untersuchten Additiven bereitzustellen. Des weiteren wurden die Versuche mit Wasserdampf bei einer Temperatur von $T = 385$ K durchgeführt, um den direkten Einfluss des Wasserdampfs auf den DDT bei gleichem Temperaturniveau wie die in Kapitel 5.2 beschriebenen Versuche zu untersuchen.

Neben dem Wasserdampf wurde der Einfluss der Additive Kohlenmonoxid und Kohlendioxid auf das Brennverhalten untersucht. Kohlenmonoxid wird in der Folge dabei gesondert betrachtet, da es im Gegensatz zu Kohlendioxid und Wasserdampf ein brennbares Gas darstellt.

5.3.1 Einfluss von Wasserdampf und Kohlendioxid

Der Einfluss von H_2O und CO_2 auf den Brennverlauf unterscheidet sich deutlich von dem in der Luft enthaltenen Stickstoff. Abbildung 5.42 zeigt die Auswirkung der Beimengung dieser beiden Stoffe auf die laminare Brenngeschwindigkeit sowie das Expansionsverhältnis σ . H_2O und CO_2 zeigen sehr ähnliche Effekte auf, wobei stets CO_2 einen geringfügig größeren Einfluss hat als H_2O . Ebenso steigen, wie in Anhang A gezeigt, die Detonationszellweiten erheblich durch die Beimengung dieser Additive an. Die Änderung in den Detonationszellweiten liegt primär daran, dass sich die Induktionslängen aufgrund der niedrigeren VN-Temperaturen (durch den

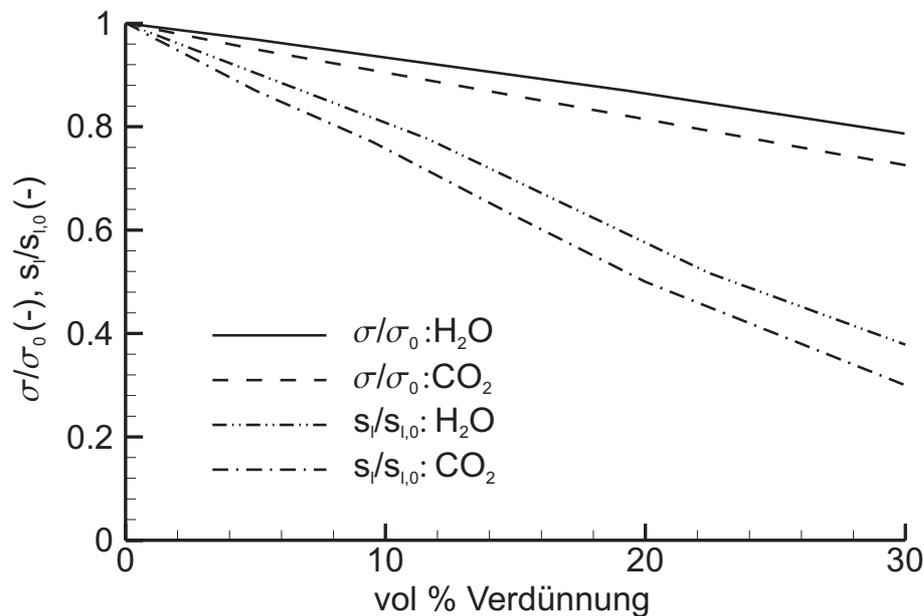


Abbildung 5.42: Einfluss der Verdünnungen eines stöchiometrischen Wasserstoff-Luft Gemisches mit H_2O und CO_2 auf die laminare Brenngeschwindigkeit [KM86, BCD⁺00] und das Expansionsverhältnis (berechnet mit STANJAN). Ausgangszustand für H_2 - H_2O -Luft Gemische: $T = 385 \text{ K}$, $p = 1 \text{ bar}$.

Unterschied in den Wärmekapazitäten) von H_2O und CO_2 im Vergleich zu N_2 vergrößern.

Gerade jedoch der Wasserdampf darf bei Berechnungen nicht als inert angenommen werden. Der chemische Einfluss des Wasserdampfes auf den Reaktionsablauf von Detonationen wird deutlich, wenn man die Reaktionszonenlänge von Detonationen berechnet und dabei einmal die realen Additive verwendet und im Vergleich dazu die Additive durch inerte Gase ersetzt, die jedoch identische thermodynamische Stoffeigenschaften aufweisen. Abbildung 5.43 zeigt das Ergebnis dieser Berechnung. Der chemische Einfluss von CO_2 ist vernachlässigbar klein und kommt daher, dass im Verbrennungsablauf für unterstöchiometrische Gemische kleine Mengen an CO entstehen. Für überstöchiometrische Gemische hingegen nimmt nach Shepherd [She86] der Anteil an gebildetem CO erheblich zu. Die Auswirkung von CO auf die Verbrennung werden in Abschnitt 5.3.2 dargestellt.

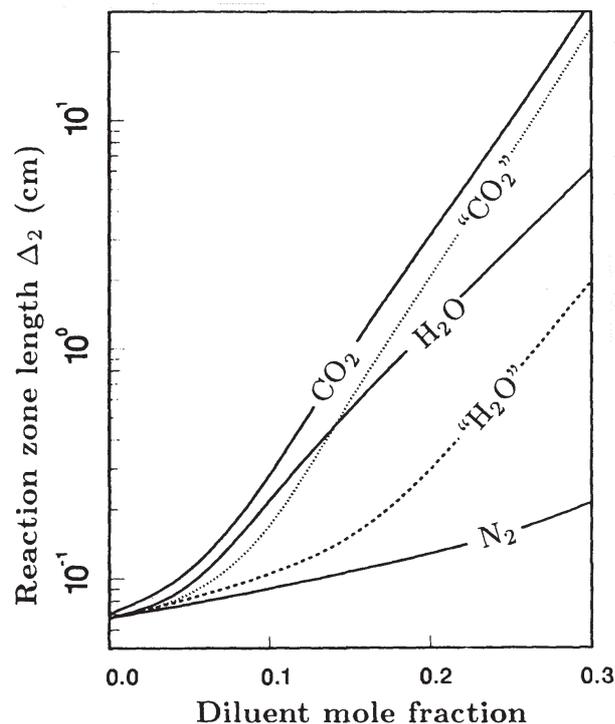


Abbildung 5.43: Reaktionszonenlänge für die Verdünnung von stöchiometrischen Wasserstoff-Luft Gemischen mit CO_2 , H_2O und N_2 . Die Kurven CO_2 und H_2O stehen für angenommene inerte Additive, welche jedoch identische thermodynamische Stoffeigenschaften aufweisen, [She86].

Der chemische Effekt von H_2O ist deutlich stärker. Dies liegt vorwiegend an dem großen Einfluss von Wasserdampf auf die Reaktion



mit

$$[\text{M}] = [\text{H}_2] + 0.4[\text{O}_2] + 0.4[\text{N}_2] + 1.5[\text{CO}_2] + 6.5[\text{H}_2\text{O}], \quad [\text{WMD97}]. \quad (5.10)$$

Diese Reaktion hat, wie bereits in Kapitel 2 ausgeführt, einen großen Einfluss auf den Wasserstoff-Luft Reaktionsablauf, da HO_2 in einer Reihe von Reaktionen mit niedriger Aktivierungsenergie mit H , OH und O weiterreagiert.

Diese theoretischen Betrachtungen bestätigen sich auch bei den durchgeführten Experimenten. Abbildung 5.44 zeigt den Einfluss von Wasserdampf auf den detonationsfähigen Gemischbereich sowie die dabei beobachteten maximalen Flammgeschwindigkeiten. Wie aus Abbildung 5.44 ersichtlich, konnte ab einer Verdünnung von 15 vol % H_2O bei keinem Stöchiometrieverhältnis eine Detonation beobachtet werden. Die Flammgeschwindigkeiten lagen dabei, wie bei reinen H_2 -Luft Gemischen, im deflagrativen Fall nahe der isobaren Schallgeschwindigkeit bzw. für Detonation bei der entsprechenden CJ-Detonationsgeschwindigkeit.

Die Verdünnung des Wasserstoff-Luft Gemisches mit CO_2 führt bei einer Gemischtemperatur von $T = 293 \text{ K}$ zu einem ähnlichen Ergebnis wie die Verdünnung mit H_2O bei $T = 385 \text{ K}$. Abbildung 5.45 zeigt den Einfluss von CO_2 auf den detonationsfähigen Gemischbereich im Explosionsrohr. Die Detonationsgrenzen sind bei einer Verdünnung von 5 vol % H_2O bzw. CO_2 nahezu identisch. Jedoch weichen die Ergebnisse bei einer Verdünnung mit 10 vol % voneinander ab. Im Falle der Beimengung von 10 vol % CO_2 traten nur Detonationen für stöchiometrische und überstöchiometrische Gemischzusammensetzungen ($\phi = 1$ bis 1.3) auf. Dies widerspricht jedoch der in Anhang A.5 gezeigten Detonationszellweitenverteilung, die für $\phi = 1$ ein eindeutiges Minimum aufweist.

Berechnet man hingegen die Reaktionszonenlänge, so lässt sich feststellen, dass das Minimum im überstöchiometrischen Bereich liegt. Betrachtet man den Gemischbereich, in welchem im Experiment Detonationen auftreten,

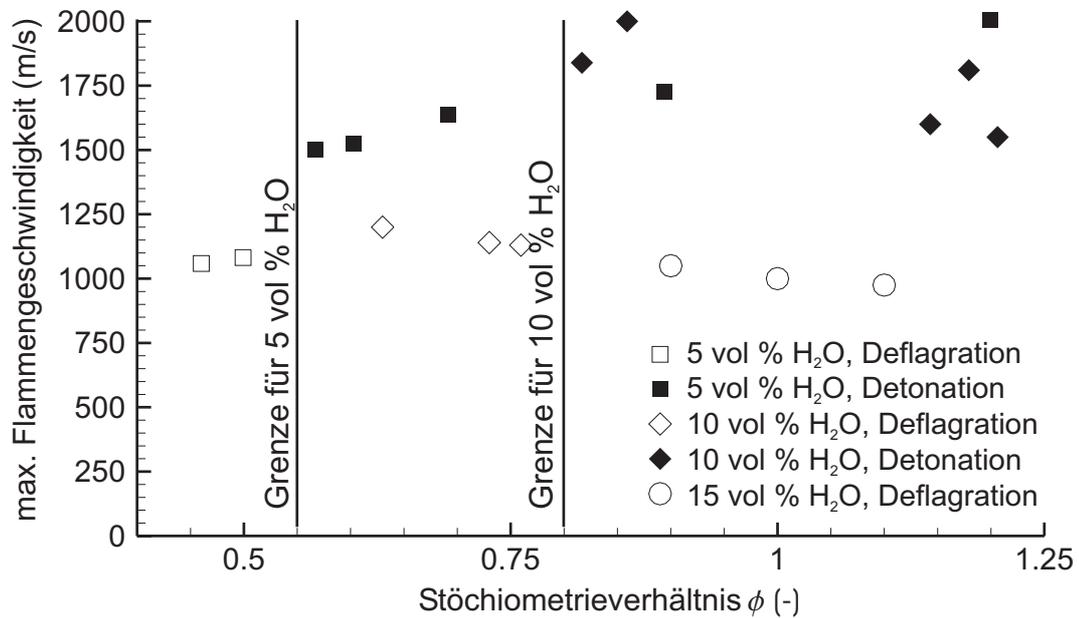


Abbildung 5.44: Einfluss von Wasserdampf auf den detonationsfähigen Gemischbereich. Ausgangstemperatur des unverbrannten Gemisches: 385 K.

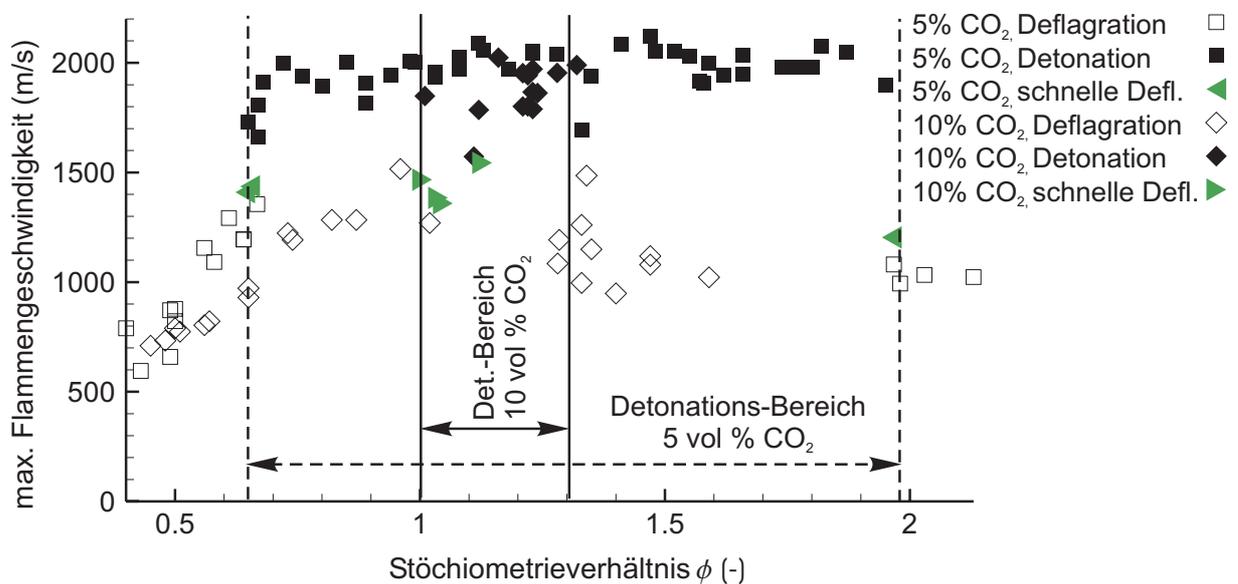


Abbildung 5.45: Einfluss von Kohlendioxid auf den detonationsfähigen Gemischbereich. Ausgangstemperatur des unverbrannten Gemisches: 293 K.

so zeigt sich, dass dieser genau mit den minimalen Werten der Reaktionszonenlänge übereinstimmt, siehe Abbildung 5.46. Diese Messungen widerlegen somit die gemessenen Detonationszellweiten und bestätigen die theoretischen Analysen. Generell lässt sich feststellen, dass Wasserdampf und Kohlendioxid in Bezug auf ihre inhibitorische Wirkung auf den Übergang in die Detonation vergleichbare Eigenschaften aufweisen.

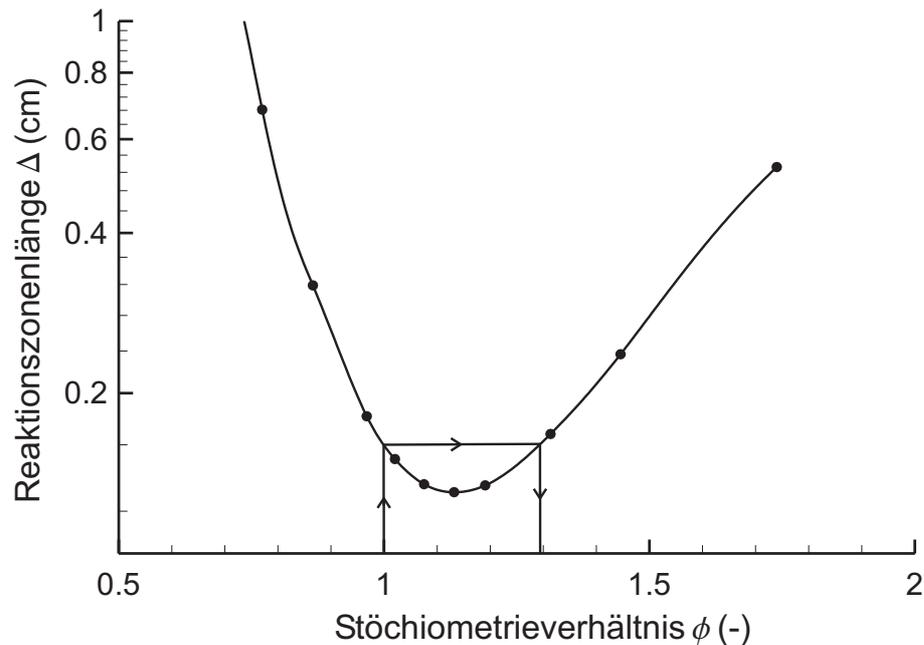


Abbildung 5.46: Reaktionszonenlänge von Wasserstoff-Luft Detonationen, verdünnt mit 10 vol % CO_2 , berechnet mit dem ZND-Code.

5.3.2 Einfluss von Kohlenmonoxid

Kohlenmonoxid stellt gerade im Zusammenhang mit Wasserstoff eine Besonderheit aus reaktionskinetischer Sicht dar. Die Oxidation von CO kann über die Reaktion



erfolgen. Liegen bereits geringfügige Mengen von Wasserstoff, Wasserdampf oder Kohlenwasserstoffen im Gemisch vor, so erfolgt die Reakti-

on fast ausschließlich über die Reaktion (5.11) [Gar84]. Die Menge an H-haltigen Gasen beeinflusst den Oxidationsprozess erheblich. Austin und Shepherd [AS00] konnten zeigen, dass bereits durch eine Beimengung von 0.02 vol % H_2 die Reaktionszonenlänge Δ von Detonationen um drei Größenordnungen abnimmt. Kann die Oxidation nur über die Reaktion (5.12) erfolgen, so ist aufgrund der langen Zündverzugszeiten kein detonativer Verbrennungsablauf möglich.

Unter Umgebungsbedingungen ist CO zwischen 12.5 und 74 vol % brennbar, die Selbstzündtemperatur liegt bei 1070 K, sinkt aber mit zunehmendem Anteil von Wasserdampf (oder Wasserstoff) im Gemisch auf 870 K. Die entsprechenden laminaren Brenngeschwindigkeiten für CO-Luft Gemische unter Umgebungsbedingungen sind sehr niedrig und liegen für ein stöchiometrisches Kohlenmonoxid-Luft Gemisch bei ca. 0.18 m/s [SM99]. Bis auf die laminare Brenngeschwindigkeit verhalten sich Kohlenmonoxid und Wasserstoff von den meisten Verbrennungseigenschaften analytisch betrachtet ähnlich. Des weiteren weisen beide Brennstoffe das gleiche Stöchiometrieverhältnis auf. Auch die spezifischen Heizwerte sind vergleichbar (Wasserstoff 10.8 MJ/m³, Kohlenmonoxid 12.6 MJ/m³).

Abbildung 5.47 zeigt den Einfluss von CO auf den Wasserstoff-Luft Verbrennungsablauf über dem Gesamtstöchiometrieverhältnis ϕ , wobei die Flammenbeschleunigung mit der Hinderniskonfiguration "60-185-3000" erfolgte. Es ist deutlich zu erkennen, dass weder die Beimengung von 1 vol % CO noch von 7 vol % CO zu einer Veränderung des Brennverhaltens führt, sofern man das Gesamtstöchiometrieverhältnis von CO und H_2 in Luft betrachtet, siehe Anhang B. Daraus läßt sich folgern, dass in dem in Abbildung 5.47 dargestellten detonationsfähigen Gemischbereich das Kohlenmonoxid für den Verbrennungsablauf berücksichtigt werden muss, jedoch aus sicherheitstechnischer Sicht der Anteil von Kohlenmonoxid durch Wasserstoff ersetzt werden kann. Eine experimentell bestimmte Verteilung der Detonationszellweiten für diese H_2 -CO-Luft Gemische konnte in der Literatur nicht gefunden werden. Aus diesem Grund wurde die Reaktionszonenlänge analytisch bestimmt, die sich wiederum annähernd proportional zur Detonationszellweite verhält, siehe Kapitel 2.

Abbildung 5.48 zeigt die Reaktionszonenlängen der in Abbildung 5.47 dargestellten H_2 -CO-Luft Gemische. In dem durch die Anlagengeome-

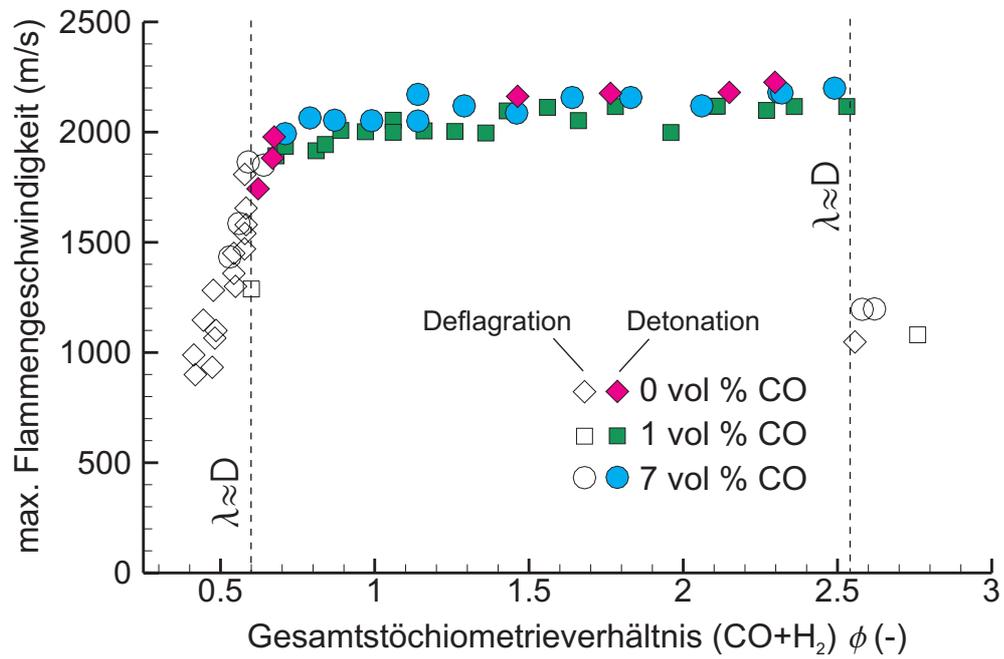


Abbildung 5.47: Einfluss von CO auf den Wasserstoff-Luft Verbrennungsablauf.

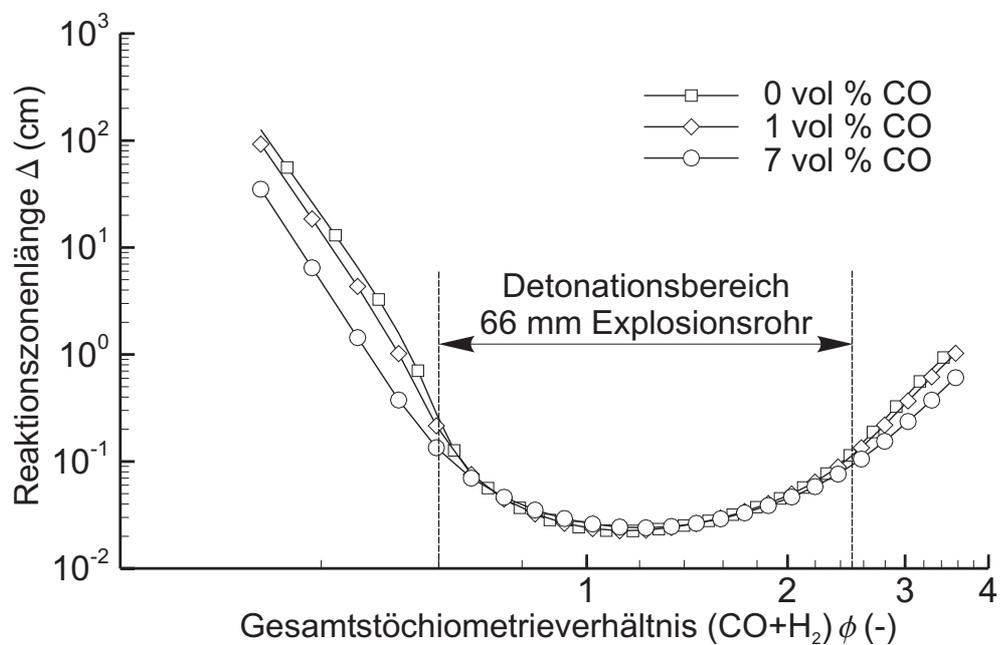


Abbildung 5.48: Reaktionszonenlänge von H₂-CO-Luft Gemischen.

trie begrenzten Detonationsbereich ist zu erkennen, dass die Reaktionszonenlängen nahezu identisch sind, wodurch ein identisches Ausbreitungsverhalten erklärt werden kann. Jedoch gilt dies nicht für weniger sensitive Gemischzusammensetzungen. Für diesen Fall liegt nach der ZND-Berechnung die Reaktionszonenlänge und somit auch die Detonationszellweite für Gemische mit CO niedriger im Vergleich zu reinen H₂-Luft Gemischen, wodurch für diesen Fall der detonationsfähige Gemischbereich in geschlossenen Räumen vergrößert wird. Dies konnte jedoch aufgrund der kleinskaligen Dimension der Versuchsanlage nicht experimentell überprüft werden.

5.4 DDT in Hythane-Gemischen

Hythane-Gemische sind Dreistoffgemische aus Wasserstoff, Methan und Luft. Im Vergleich zu den bisher diskutierten Additiven unterscheidet sich das Methan erheblich aufgrund seiner Verbrennungseigenschaften. Methan verbrennt mit einem um den Faktor 3.5 größeren spezifischen (volumenbezogenen) Heizwert im Vergleich zu Kohlenmonoxid und Wasserstoff:



Wie anhand der Reaktion (5.13) erkennbar, wird bei Methan pro Mol Brennstoff der vierfache Anteil von Sauerstoff bei einer stöchiometrischen Verbrennung im Vergleich zu der Wasserstoff-Oxidation benötigt. Der zündfähige Gemischbereich ist im Gegensatz zu Wasserstoff deutlich schmaler (5.7 - 17 vol %).

Der Einfluss von Methan auf das Detonationsverhalten in Hythane-Gemischen ist im Voraus schwer einzuschätzen. Die Detonationszellweiten von reinen Methan-Luft Gemischen liegen für stöchiometrische Gemische bei $\lambda = 200 - 300$ mm. Dies lässt zunächst darauf schließen, dass Methan eine inhibitorische Wirkung auf den Übergang in Detonationen in Hythane-Gemischen hat. Dies wurde auch von Eichert [Eic89] nachgewiesen, indem er Methan zu stöchiometrischen Wasserstoff-Luft Gemischen beimengte und somit in einem 56 mm-Explosionsrohr ab einer Zumischung von 4 vol % einen Übergang in die Detonation unterbinden konnte. Jedoch steigt mit diesem Verfahren das Stöchiometrieverhältnis des gesam-

ten Brennstoff-Luft Gemisches an, wodurch eine differenzierte Betrachtung des Methan-Einflusses nicht gewährleistet ist. Lässt man hingegen das Stöchiometrieverhältnis konstant und variiert den Anteil von Wasserstoff und Methan, so lässt sich die Auswirkung der hohen volumenbezogenen Energiedichte von Methan auf das Brennverhalten analysieren (Definition des Gesamtstöchiometrieverhältnisses siehe Anhang B).

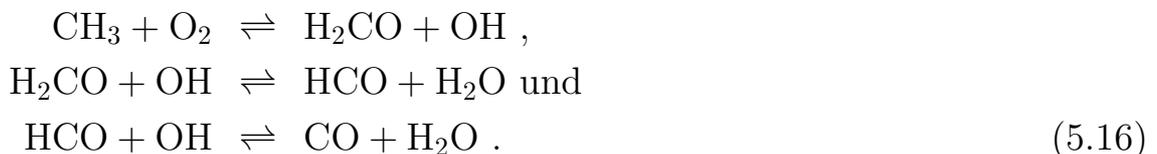
Aus reaktionskinetischer Sicht betrachtet verhält sich das Methan-Molekül im Hythane-Gemisch aufgrund der höheren Aktivierungsenergie der Startreaktion



im Vergleich zur Wasserstoff-Luft Startreaktion (2.35) zunächst träger, reagiert aber dann deutlich schneller mit dem frei werdenden H-Radikal über die Reaktion



Dieses Verhalten zeigt sich auch in einer Simulation der Detonationsstruktur, wie exemplarisch für ein $\phi = 0.6$ Hythane-Gemisch (13 vol % H_2 , 2.1 vol % CH_4) in Abbildung 5.49 gezeigt. Das CH_4 -Molekül fängt erst nach dem Beginn des Wasserstoff-Abbaus an zu reagieren, baut sich aber dann schneller als der Wasserstoff ab. Als Zwischenprodukt entsteht jedoch ein großer Anteil an CO über die Formaldehydreaktionen



Der Gemischanteil des Kohlenmonoxids ist dabei vergleichbar zu der Ausgangskonzentration des Methans und wird über die Reaktion (5.11) abgebaut. Da Wasserstoff und Methan in ihrem Reaktionsablauf mit den in beiden Reaktionsketten auftretenden Radikalen reagieren und zudem – nach dem CH_4 -Abbau – das stabile reaktive Molekül CO entsteht, ist in einer Vorhersage nicht eindeutig zu klären, ob und wann Methan als

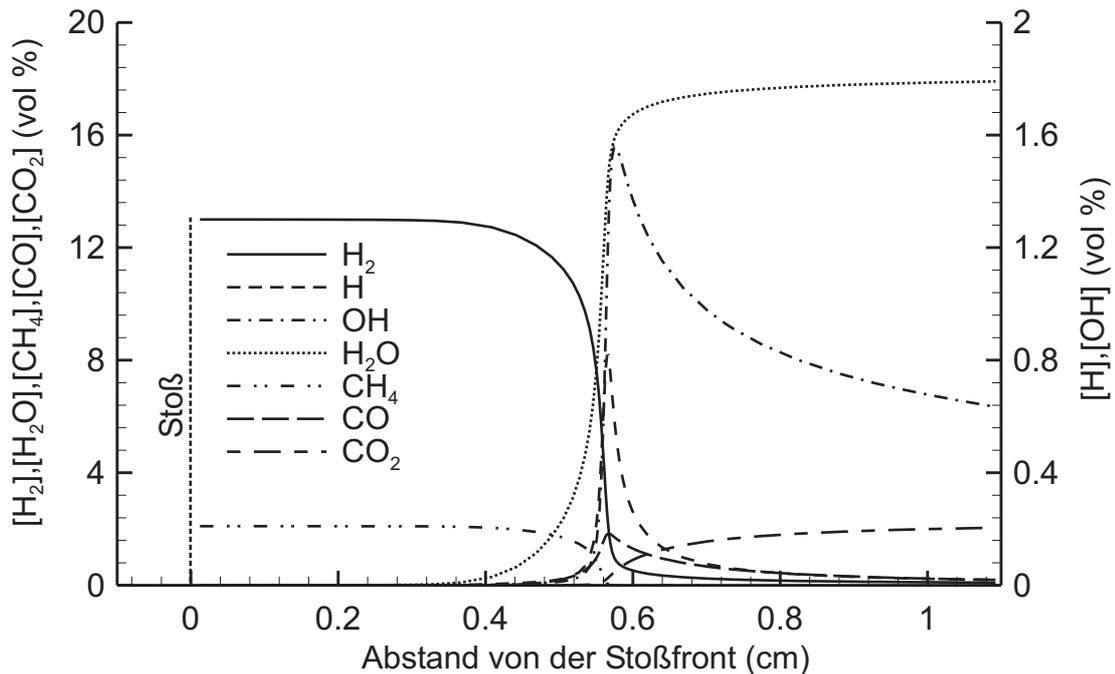


Abbildung 5.49: ZND-Simulation der Detonationsstruktur eines $\phi = 0.6$ Hythane-Gemisches (bestehend aus 13 vol % H_2 und 2.1 vol % CH_4).

Inhibitor wirkt oder den Übergang von der Deflagration in die Detonation unterstützt.

Abbildung 5.50 zeigt die Abhängigkeit der maximal im Explosionsrohr erreichten Flammengeschwindigkeiten von der Gemischzusammensetzung der Hythane-Gemische. Gemische mit $[\text{H}_2]/[\text{CH}_4] = 0$ repräsentieren dabei reine Methan-Luft Gemische. Bei reinen Methan-Luft Gemischen konnte kein Übergang von einer Deflagration in eine Detonation beobachtet werden, da das Detonationszellweitenkriterium höchstens eine Spindetonation bei einem $\phi = 1$ Methan-Luft Gemisch zulassen könnte. Dafür wurde jedoch in der eingesetzten Hindernisstrecke (“60-185-2000”) nicht eine dafür erforderliche Flammengeschwindigkeit über der isobaren Schallgeschwindigkeit erreicht. Da das Expansionsverhältnis σ von Methan-Luft Gemischen sich nur unwesentlich von dem der Wasserstoff-Luft Gemische unterscheidet, ist dieser Effekt auf die wesentlich kleinere laminare Brenngeschwindigkeit des Methan-Luft Gemisches zurückzuführen ($s_l = 0.37$ m/s für $\phi = 1$), die innerhalb der kurzen Hindernisstrecke keine höheren Ausbreitungsgeschwindigkeiten zuläßt. Wolanski et al. [WKS81] beob-

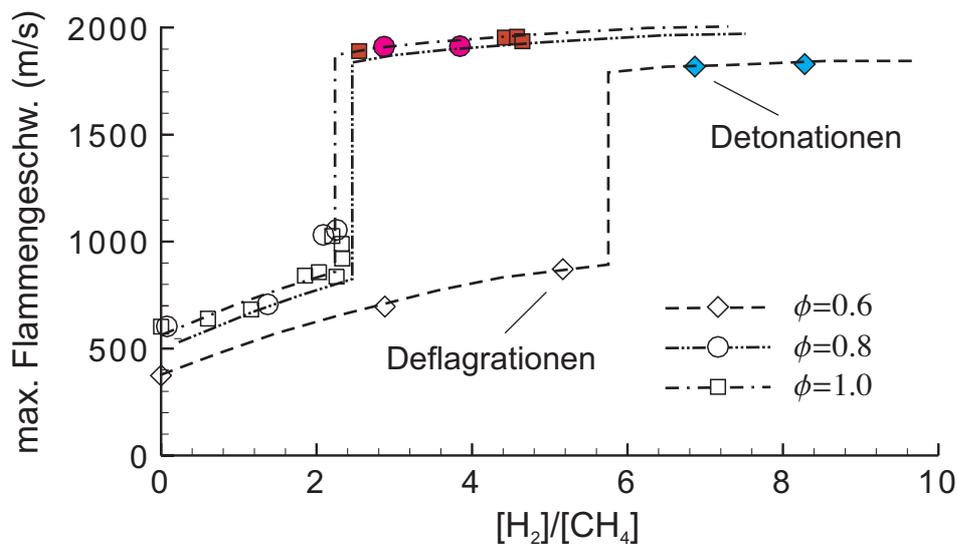


Abbildung 5.50: Maximale Flammengeschwindigkeit von Hythane-Gemischen mit $\phi = 0.6, 0.8$ und 1.0 über dem Verhältnis der Volumenanteile von Wasserstoff und Methan.

achteten hingegen in einer ähnlich dimensionierten Versuchsanlage Spin-Detonationen von reinen Methan-Luft Gemischen durch Zündung hinter einer harten Stoßwelle, die sich in das Methan-Luft Gemisch hinein ausbreiteten. Mit zunehmendem Wasserstoffanteil nimmt auch bei gleichem Stöchiometrieverhältnis die Ausbreitungsgeschwindigkeit zu und auch hier erfolgt – wie bei den reinen Wasserstoff-Luft Gemischen – der Übergang in die Detonation bei Ausbreitungsgeschwindigkeiten der Flamme nahe der isobaren Schallgeschwindigkeit. Für $\phi = 1.0$ und $\phi = 0.8$ erfolgt der Übergang in die Detonation bei annähernd dem gleichen Verhältnis der beteiligten Brennstoffanteile. Aufgrund dieser Beobachtung wurde in Abbildung 5.51 der Detonationsbereich der Hythane-Gemische in Abhängigkeit des Methan- sowie des Wasserstoff-Anteils aufgetragen. In diesem Diagramm ist ersichtlich, dass für $\phi \approx 0.8$ ein minimaler Wasserstoff-Anteil für den Übergang in die Detonation erforderlich ist. Geht man davon aus, dass es sich bei den in Hythane-Gemischen beobachteten Detonationen um planare Detonationen handelt, so sinkt der für die Detonationsauslösung erforderliche Gesamtanteil an Brennstoff in dem Brennstoff-Luft Gemisch um ca. 4 vol % ab, wobei hier im Gegensatz zu reinen Wasserstoff-Luft Gemischen das Stöchiometrieverhältnis ϕ um 0.2 höher liegt. Aus dieser Sicht betrachtet stellen Hythane-Gemische eine größere sicherheitstechni-

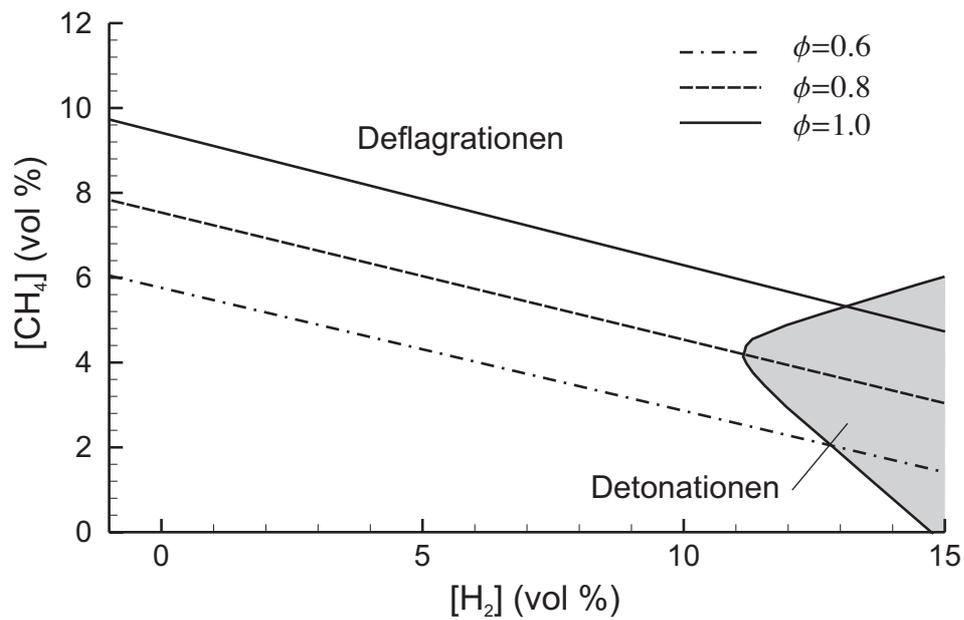


Abbildung 5.51: Detonationsbereich von Hythane-Gemischen im 66 mm Explosionsrohr.

sche Gefährdung in Bezug auf die Detonationsfähigkeit dar, als sie für reine Wasserstoff-Luft Gemische beobachtet wurden.

6 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Ausbreitungsverhalten von schnellen Deflagrationen und Detonationen sowie der Übergang von der Deflagration in die Detonation (DDT), initiiert durch turbulenter Flammenbeschleunigung, untersucht. Das Hauptaugenmerk lag dabei darauf, Mechanismen, die zum Übergang einer Deflagration in eine Detonation führen, zu identifizieren und auf dieser Basis Kriterien für das Auftreten dieser grundlegend unterschiedlichen Verbrennungsarten aufzuzeigen.

Die Untersuchungen wurden an einem beidseitig geschlossenen Explosionsrohr (\varnothing 66 mm, Länge 6.5 m) durchgeführt. Dabei wurde vorwiegend ein vorgemischtes Wasserstoff-Luft Gemisch bei Umgebungsbedingungen untersucht, aber auch der Einfluss des thermodynamischen Anfangszustandes des Gemisches (durch Variation des Drucks bzw. der Gemischtemperatur) sowie der Beimengung weiterer sicherheitstechnisch relevanter Gase (Wasserdampf, Kohlendioxid, Kohlenmonoxid und Methan) untersucht. Die Flammenbeschleunigung erfolgte mit einer Kaskade blendenförmiger Hindernisse. Um ein Spektrum an Flammengeschwindigkeiten und sowie deren Einfluss auf den Übergang von der Deflagration in die Detonation zu untersuchen, wurde sowohl der freie Blendenquerschnitt (ausgedrückt durch die Blockierrate BR) als auch der Abstand zwischen den Blenden sowie die Gesamtlänge der Blendenkaskade variiert.

Die Untersuchung der Flammen und des Brennverhaltens erfolgte vorwiegend mit optische Messverfahren. So konnte durch die Hochgeschwindigkeits-Schlierenphotographie und ein, speziell an die hochtransienten Wasserstoff-Luft Verbrennungsvorgänge angepasstes Farbschlierenphotographieverfahren die Flammenfront sowie die ihr vorauslaufende Stoßfront visualisiert werden. Der Einsatz laseroptischer Verfahren wie der planaren Laser-induzierten Prädissoziations-Fluoreszenz (PLIPF) ermöglichte die detaillierte Untersuchung der Flammenstruktur in Einzelschnittbildern. Globale Messgrößen ermöglichten des weiteren die Wiedergabe des Flammenfortschritts sowie Rückschlüsse auf die örtlichen und zeitlichen Druckbelastung während des Verbrennungsablaufes zu ziehen. Auf diese Weise waren Aussagen über Maximaldrücke und Flammengeschwindigkeiten möglich.

Bei dem Verbrennungsablauf im Explosionsrohr muss zwischen der Verbrennung in der Hindernisstrecke und im daran anschließenden, unblockierten Rohrabschnitt unterschieden werden. In der Hindernisstrecke wurden sowohl Deflagrationen mit einer charakteristischen Ausbreitungsgeschwindigkeit in Höhe der isobaren Schallgeschwindigkeit als auch stoßinduzierte Quasidetonationen beobachtet. Abhängig von dem Brennregime in der Hindernisstrecke wurden in dem daran anschließenden, blendenfreien Rohrabschnitt ein Übergang in die langsame Deflagration oder die überschall-schnelle Detonation bis zur geometrischen Ausbreitungsgrenze (Marginal-Detonationen) sowie ein, zu der Hindernisstrecke unverändertes Ausbreitungsverhalten beobachtet (schallnahe Deflagration). Bei Versuchen im Rohr ohne jegliche Hinderniseinbauten blieb in Abhängigkeit des Stöchiometrieverhältnisses die Flammengeschwindigkeit unter 100 m/s oder es erfolgten zwei Geschwindigkeitssprünge auf die Geschwindigkeit der schallnahen Deflagration und im Anschluss daran in die Detonation.

In der Hindernisstrecke beschleunigt die Flamme durch den Einfluss der Blenden auf die Strömungsgeschwindigkeit (Jet-Wirkung) sowie auf die Turbulenz der Strömung auf eine Ausbreitungsgeschwindigkeit von mehreren hundert Metern pro Sekunde. Ausschlaggebend für das sich in der Hindernisstrecke einstellende Brennverhalten ist neben der Gemischzusammensetzung vorwiegend der Hindernisabstand. Für Hindernisabstände, die um den Faktor 1.5 größer als der Rohrdurchmesser waren, traten bereits ab einem Stöchiometrieverhältnis von $\phi = 0.4$ in der Hindernisstrecke Quasidetonationen mit einer Geschwindigkeit von ca. 1000 m/s auf. Der Grund dafür liegt darin, dass bei dem größeren Hindernisabstand der Einfluss der Blenden auf den Reibungsverlust stark abnimmt. Durch die Hindernisse zusammen mit der kleinen Rohrdimension wird ein System starker Transversalwellen aufrechterhalten, das eine stoßinduzierte Verbrennung in der Hindernisstrecke ermöglicht.

Für den Fall, dass die Flamme die Ausbreitungsgeschwindigkeit von ca. 1000 m/s wie in der Hindernisstrecke im unblockierten Rohr beibehält, konnte mit Hilfe der PLIPF-Messtechnik nachgewiesen werden, dass es sich hierbei um eine Überlagerung von stoßinduzierten, volumetrischen Zündungen des unverbrannten Gemisches mit einer turbulenten, deflagrativen Flammenfront handelt. Für dieses Ausbreitungsverhalten wurden im Explosionsrohr die höchsten Druck- und Impulsbelastungen am Endflansch

des Explosionsrohres (über einer Zeit von 0.2 ms lagen mehr als 200 bar an) beobachtet. Dieses Phänomen konnte analytisch darauf zurückgeführt werden, dass eine volumetrische Reaktion am Endflansch durch die Reflexion der Stoßwelle zu diese hohen Druckbelastungen führt.

Bei Detonationen in Gemischen, deren Zellweiten im Bereich $D\pi > \lambda > D$ liegen (Marginal-Detonationen), konnte im Rahmen der durchgeführten laseroptischen Untersuchungen festgestellt werden, dass hinter der Reaktionsfront Taschen mit unverbranntem Frischgas eingeschlossen werden. Anhand dieser experimentellen Ergebnisse sowie numerischer Studien von Oran (Naval Research Centre, Washington) konnte das Ausbreitungsverhalten dieser Marginaldetonationen beschrieben werden und ihre Stabilität mit der Größe sowie der Reaktionsgeschwindigkeit der Frischgastaschen erklärt werden.

Der Detonationsübergang im Rohr ohne Hindernisse konnte auf eine Richtmyer-Meshkov Instabilität (Wechselwirkung zwischen Flamme und einem gegenläufigen Verdichtungsstoß) zurückgeführt werden. Wie im Rahmen dieser Arbeit nachgewiesen werden konnte, führt diese Instabilität gerade bei geringen Flammenausbreitungsgeschwindigkeiten zu einer starken, impulsartig auftretenden Flammenbeschleunigung bis zu der isobaren Schallgeschwindigkeit, wodurch ein Übergang in die Detonation möglich ist.

In weiteren Untersuchungen wurde auch der Einfluss von Additiven auf den Verbrennungsvorgang von Wasserstoff-Luft Gemischen untersucht. Dabei konnte festgestellt werden, dass sowohl Wasserdampf als auch Kohlendioxid einen vergleichbaren Effekt als Inhibitoren aufweisen. Für das Additiv Kohlenmonoxid konnte nachgewiesen werden, dass es sich im Wasserstoff-Luft Gemisch bei detonativen Verbrennungsvorgängen ähnlich zu Wasserstoff verhält und im Rahmen der Simulationen für die Sicherheitsforschung auch durch Wasserstoff ersetzt werden kann. Bei Hythane-Gemischen (Wasserstoff/Methan/Luft-Gemische) konnte gezeigt werden, dass für bestimmte Mischungsverhältnisse der für die Detonationsentstehung minimal erforderliche Brennstoffanteil am Gesamtgemisch um bis zu 4 vol % niedriger liegt als bei reinen Wasserstoff-Luft Gemischen, wodurch Hythane-Gemische eine größere sicherheitstechnische Gefährdung in Bezug auf die Detonationsfähigkeit als reine Wasserstoff-Luft Gemische darstellen.

Literatur

- [AB72] G.E. Andrews und D. Bradley. Determination of Burning Velocities: A Critical Review. *Combustion and Flame*, 18:133–153, 1972.
- [ABL75] G.E. Andrews, D. Bradley und S.B. Lwakabamba. Turbulence and Turbulent Flame Propagation. *Combust. and Flame*, 24:285–304, 1975.
- [AGB81] R.G. Abdel-Gayed und D. Bradley. A Two-Eddy Theory of Premixed Turbulent Flame Propagation. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 301/A:1–25, 1981.
- [AGB89] R.G. Abdel-Gayed und D. Bradley. Combustion Regimes and the Straining of Turbulent Premixed Flames. *Combust. and Flame*, 76:213–218, 1989.
- [AKSS98] R. Akbar, M. Kaneshige, E. Schultz und J.E. Shepherd. Detonations in H₂-N₂O-CH₄-NH₃-O₂-N₂ Mixtures. Explosion Dynamics Laboratory Report FM97-3, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 1998.
- [AP99] O.V. Achasov und O.G. Penyazkov. Dynamics Study of Detonation Wave Cellular Structure. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-932217-01-2.
- [Ard98] N. Ardey. *Struktur und Beschleunigung turbulenter Wasserstoff-Luft-Flammen in Räumen mit Hindernissen*. Dissertation, TU München, 1998.
- [AS00] J.M. Austin und J.E. Shepherd. Detonations in Hydrocarbon Fuel Blends. Explosion Dynamics Laboratory Report FM99-6, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 2000.
- [Bar75] F. Bartlmä. *Gasdynamik der Verbrennung*. Springer Verlag, Wien, 1975.
- [BCC⁺94] D.L. Baulch, C.J. Cobos, R.A. Cox, P. Frank, G. Hayman, T. Just, J.A. Kerr, T. Murrells, M.J. Pilling, J. Troe, R.W. Walker und J. Warnatz. Evaluated Kinetic Data for Combustion Modeling: Supplement I. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 23(6):847–1033, 1994.
- [BCD⁺00] W. Breitung, C.K. Chan, S. Dorofeev, A. Eder, B. Gerlfand, M. Heitsch, R. Klein, A. Malliakos, J.E. Shepherd, E. Studer und P. Thibault. Flame Acceleration and Deflagration-to-Detonation Transition in Nuclear Safety. OECD State-of-the-Art Report by a Group of Experts, NEA/CSNI/R(2000)7, 2000.
- [BCG⁺99] W. Breitung, I. Coe, H. Grönig, L. He, R. Klein, H. Olivier, W. Rehm, E. Studer und B. Wang. *Models and Criteria for Prediction of Deflagration-to-Detonation Transition (DDT) in Hydrogen-Air-Steam Systems under Severe Accident Conditions*. Projekt FI4S-CT96-0025 - Final Report. European Commission, Brussels, 1999.

- [Bea94] R. Beauvais. *Brennverhalten vorgemischter, turbulenter Wasserstoff-Luft-Flammen in einem Explosionsrohr*. Dissertation, TU München, 1994.
- [BES82] D.C. Bull, J.E. Elsworth und P.J. Shuff. Detonation Cell Structures in Fuel/Air Mixtures. *Combustion & Flame*, 45:7–22, 1982.
- [BHD99] M. Brouillette, F. Haloua und G. Dupre. Competing Mechanisms for the Gaseous Galloping Detonation. In *Proceedings of the 22nd Int. Symp. on Shock Waves (ISSW22)*, London, 1999. ISBN 085432-706-1.
- [BMS94] R. Beauvais, F. Mayinger und G. Strube. Turbulent Flame Acceleration–Mechanisms and Significance for Safety Considerations. *Int. J. Hydrogen Energy*, 19(8):701–708, 1994.
- [Bor84] R. Borghi. On the Structure of Turbulent Premixed Flames. In C. Bruno und C. Casci, Hrsg., *Recent Advances in Aeronautical Science*. Pergamon Press, 1984.
- [Brü95] D. Brüggemann. Laserdiagnostische Verfahren zur Untersuchung reagierender Strömungen. In *Proc. of Space Course*, Stuttgart, 1995. ISBN 3-930683-03-2.
- [Bra92] D. Bradley. How Fast can we Burn? In *24th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 247–262. The Combustion Institute, 1992.
- [Bra99] P. Bradshaw. Physics of Turbulence. Lecture Notes for the Short Course on the Understanding, Modelling, and Simulation of Turbulence, 1999.
- [Bre87] N. Brehm. *Ein Beitrag zum Phänomen des Übergangs von der Deflagration in die Detonation*. Dissertation, TU München, 1987.
- [BS99] W.M. Beltman und J.E. Shepherd. Structural Response of Shells to Detonation and Shock Loading. Technical report, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 1999.
- [CCL93] R.S. Chue, J.F. Clarke und J.H.S. Lee. Chapman-Jouguet Deflagrations. In *Proc. Roy. Soc. London*, vol. 441, pp. 607–623. The Royal Society, 1993.
- [CD96] C.K. Chan und W.A. Dewit. Deflagration-to-Detonation Transition in End Gases. In *26st (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 2679–2684. The Combustion Institute, 1996.
- [CDK96] C.K. Chan, W. Dewit und G.W. Koroll. Criteria for Transition from Deflagration to Detonation in H₂-Air-Steam Mixtures. In J.T. Rogers, Hrsg., *Heat and Mass Transfer in Severe Reactor Accidents*, pp. 372–379. Begell House, Inc., New York, 1996. ISBN 1-56700-059-2.
- [CG88] C.K. Chan und D.R. Greig. The Structures of Fast Deflagrations and Quasi-Detonations. In *22nd (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1733–1739. The Combustion Institute, 1988.

- [CGB⁺94] G. Ciccarelli, T. Ginsberg, J. Boccio, C. Economos, K. Sato und M. Kinoshita. Detonation Cell Size Measurements and Predictions in Hydrogen-Air-Steam Mixtures at Elevated Temperatures. *Combust. and Flame*, 99(2):212–220, 1994.
- [CGB⁺97] G. Ciccarelli, T. Ginsberg, J. Boccio, C. Finfrock, L. Gerlach, H. Tagawa und A. Malliakos. Detonation Cell Size Measurements in High-Temperature Hydrogen-Air-Steam Mixtures at the BNL High-Temperature Combustion Facility. Technical report, NUREG/CR-6391, BNL-NUREG-52482, Brookhaven National Laboratory, 1997.
- [Cha99] D.L. Chapman. On the Rate of Explosions in Gases. *Phil. Mag.* 47, 5th series, No. 284:90–104, 1899.
- [Cha95] C.K. Chan. Collision of a shock wave with obstacles in combustible mixture. *Comb. & Flame*, 100:341–348, 1995.
- [Chu53] B.T. Chu. On the Generation of Pressure Waves at a Plane Flame Front. In *4th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 603–612. The Combustion Institute, 1953.
- [CKL99] J. Chao, M. Kolbe und J.H.S. Lee. Influence of Tube and Obstacle Geometry on Turbulent Flame Acceleration and Deflagration to Detonation Transition. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-932217-01-2.
- [Cla85] P. Clavin. Dynamic Behavior of Premixed Flame Fronts in Laminar and Turbulent Flows. *Prog. in Energy and Combust. Sci.*, 11:1–59, 1985.
- [Cla89] J.F. Clark. Fast Flames, Waves and Detonations. *Progress in Energy and Combustion Science*, 15:241–271, 1989.
- [Cla97] P. Clavin. Galloping Detonations. In M. Champion und B. Deshaies, Hrsg., *IUTAM Symp. on Combustion in Supersonic Flows*, pp. 335–345. Kluwer Academic Publishers, 1997.
- [CLR90] C.K. Chan, D. Lau und D. Radford. Transition to Detonation Resulting from Burning in a Confined Vortex. In *23rd (Int.) Symposium on Combustion*, pp. 1797–1804. The Combustion Institute, 1990.
- [CLTP90] C. K. Chan, D. Lau, P.A. Thibault und J.D. Penrose. Ignition and detonation initiation by shock focussing. In Y.M. Kim, Hrsg., *AIP Conf. Proc.: Current topics in shock waves*, pp. 696–701, American Institute of Physics, New York, USA, 1990.
- [CSBM96] C.K. Chan, J.L. Loesel Sitar, R. Beauvais und F. Mayinger. Modeling maximum flame speed. *Nuclear Engineering and Design*, 166:463–469, 1996.

- [DKA⁺99] S.B. Dorofeev, M.S. Kuznetsov, V.I. Alekseev, A.A. Efimenko und W. Breitung. Evaluation of Limits for Effective Flame Acceleration in Hydrogen Mixtures. Technical Report IAE-6150/3, Russian Research Centre “Kurchatov Institute”, Moskau, 1999.
- [DKL86] G. Dupré, R. Knystautas und J.H.S. Lee. Near-Limit Propagation of Detonation in Tubes. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 244–259. AIAA, 1986.
- [DMW87] F. Durst, A. Melling und J.H. Whitelaw. *Theorie und Praxis der Laser-Doppler-Anemometrie*. G. Braun, Karlsruhe, 1987.
- [DPLK88] G. Dupré, O. Peraldi, J.H.S. Lee und R. Knystautas. Propagation of Detonation Waves in an Acoustic Absorbing Walled Tube. In *Prog. Astronautics Aeronautics*, vol. 114, pp. 248–263. 1988.
- [Dör43] W. Döring. Über den Detonationsvorgang in Gasen. *Analen der Physik*, Band 43:421–436, 1943.
- [Dup90] G. Dupré. Unstable Detonations in the Near-Limit Regime in Tubes. In *23rd (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1813–1820. The Combustion Institute, 1990.
- [Dur00] B. Durst. *Messungen und Simulationen zur Wechselwirkung zwischen Turbulenz und vorgemischten Flammen*. Dissertation, TU München, 2000.
- [Eck96] C. Eckbreth. *Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species*. Gordon and Breach Publishers, 1996. ISBN 90-5699-532-4.
- [EDJ01] A. Eder, B. Durst und M. Jordan. Laser-Doppler Velocimetry – Principle and Application to Turbulence Measurements. In F. Mayinger und O. Feldmann, Hrsg., *Optical Measurements. Techniques and Applications*. Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 2001.
- [EEM98] A. Eder, B. Edlinger und F. Mayinger. Einfluß Containment-typischer Strömungshindernisse auf die Ausbreitung von Wasserstoff-Luft-Flammen – Band III: Anlaufvorgänge und Maßstabeffekte. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben BMFT, Nr. 150 0957, TU München, 1998.
- [Eic89] H. Eichert. Zur Dynamik des Verbrennungsablaufs von Wasserstoff-Luft- und Wasserstoff-Methan-Luft-Gemischen. Forschungsbericht DLR-FB 89-39, Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (DLR), Institut für Technische Thermodynamik, Stuttgart, 1989.
- [EJ99] A. Eder und M. Jordan. Application and Potentials of Optical Measurement Techniques for the Investigation of Transient Combustion Phenomena. In M. Lehner und F. Mayinger, Hrsg., *Applied Optical Measurements*. Springer Verlag, Berlin, 1999.

- [EJ01] A. Eder und M. Jordan. The Schlieren Technique. In F. Mayinger und O. Feldmann, Hrsg., *Optical Measurements. Techniques and Applications*. Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 2001.
- [FD79] W. Fickett und W.C. Davis. *Detonation*. University of California Press, 1979.
- [Fer99] J.H. Ferziger. Direct and Large Eddy Simulation of Turbulence. Lecture Notes for the Short Course on the Understanding, Modelling, and Simulation of Turbulence, 1999. Hamburg, ICCM GmbH.
- [FOR99] FORTECH HTS GmbH. *Schnelles Wärmestrom und Temperaturmeßsystem*, 1999.
- [Fri86] R. Friedrich. Grundlagen turbulenter Strömungen. Vorlesungsskript, 1986. Lehrstuhl für Strömungsmechanik, TU München.
- [Gar84] W.C. Gardiner, Hrsg. *Combustion Chemistry*. Springer Verlag, New York, 1984.
- [GB95] J.F. Griffiths und J.A. Barnard. *Flame and Combustion*. Blackie Academic & Professional, Glasgow, 1995. ISBN 0751401994.
- [GDO99a] V.N. Gamezo, D. Desbores und E.S. Oran. Formation and Evolution of Two-dimensional Cellular Detonations. *Combustion & Flame*, 116:154–165, 1999.
- [GDO99b] V.N. Gamezo, D. Desbores und E.S. Oran. Two-dimensional Reactive Flow Dynamics in Cellular Detonation Waves. *Shock Waves*, 9:11–17, 1999.
- [GED98] A.I. Gavrikov, A.A. Efimenko und S.B. Dorofeev. Detonation Cell Size Predictions from Detailed Chemical Kinetic Calculations. Technical Report IAE-6091/3, Russian Research Centre “Kurchatov Institute”, Moskau, 1998.
- [GED00] A.I. Gavrikov, A.A. Efimenko und S.B. Dorofeev. A Model for Detonation Cell Size Prediction from Chemical Kinetics. *Combustion & Flame*, 120:19–33, 2000.
- [Ger96] C. Gerlach. Laseroptische Untersuchung der Wechselwirkung von Turbulenz und Reaktionskinetik in turbulenten reagierenden Strömungen. Diplomarbeit, Lehrstuhl A für Thermodynamik, Technische Universität München, 1996.
- [GFN91] B.E. Gelfand, S.M. Frolov und M.A. Nettleton. Gaseous Detonations – A Selective Review. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 17:327–371, 1991.
- [GKL+82] C.M. Guirao, R. Knystautas, J.H.S Lee, W. Benedick und M. Berman. Hydrogen-air detonations. In *19th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 583–590. The Combustion Institute, 1982.

- [GKL88] L.S. Gu, R. Knystautas und J.H.S. Lee. Influence of Obstacle Spacing on the Propagation of Quasidetonation. In Kuhl, Hrsg., *Prog. Astronautics Aeronautics*, vol. 114, pp. 232–247. AIAA, 1988.
- [GKO99] V.N Gamezo, A.M. Khokhlov und E.S. Oran. Secondary Detonation Cells in Systems with High Activation Energy. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-93221701-2.
- [GOK86] R. Guirguis, E.S. Oran und K. Kailasanath. Numerical Simulations of the Cellular Structure of Detonations in Liquid Nitromethane – Regularity of the Cell Structure. *Combustion & Flame*, 65:339–365, 1986.
- [HLvT00] Z.W. Huang, M.H. Lefebvre und P.J. v. Tiggelen. Experiments on Spinning Detonations with Detailed Analysis of the Shock Structure. *Shock Waves*, 10:119–125, 2000.
- [JKOS96] D.A. Jones, G. Kemister, E.S. Oran und M. Sichel. The Influence of Cellular Structure on Detonation Transmission. *Shock Waves*, 6:119–129, 1996.
- [Jor99] M. Jordan. *Zündung und Verbrennung in vorgemischten turbulenten Freistrahlen*. Dissertation, TU München, 1999.
- [Jou05] E. Jouguet. Sur la propagation des reactions chimiques dans les gaz. *J. Mathematique*, pp. 347, 1905.
- [KAD99] M.S. Kuznetsov, V.I. Alekseev und S.B. Dorofeev. Comparison of Critical Conditions for DDT in Regular and Irregular Cellular Detonation Systems. In *Proceedings of the 22nd Int. Symp. on Shock Waves (ISSW22)*, London, 1999. ISBN 085432-706-1.
- [KH92] K. Kohse-Höinghaus. Laseroptische Verfahren für die quantitative Bestimmung der Konzentration reaktiver Teilchen sowie der Temperatur in Verbrennungssystemen. Habilitationsschrift, Universität Stuttgart, 1992.
- [KKB93] G.W. Koroll, R.K. Kumar und E.M. Bowles. Burning velocities of hydrogen-air mixtures. *Combustion & Flame*, 94:330–340, 1993.
- [Kle93] H. Kleine. *Verbesserung optischer Methoden für die Gasdynamik*. Dissertation, RWTH-Aachen, 1993.
- [Kle95] R. Klein. Analysis of Accelerating Detonation Using Large Activation Energy Asymptotics. *Journal de Physique*, IV/5:443–457, 1995.
- [KLMW78] R. Knystautas, J.H.S. Lee, I. Moen und H.G. Wagner. Direct Initiation of Spherical Detonation by a Hot Turbulent Gas Jet. In *17th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1235–1245. The Combustion Institute, 1978.

- [KLPC86] R. Knystautas, J.H.S. Lee, O. Peraldi und C.K. Chan. Transmission of a Flame from a Rough to a Smooth-Walled Tube. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 220–243. AIAA, 1986.
- [KLST98] R. Knystautas, J.H.S. Lee, J.E. Shepherd und A. Teodorczyk. Flame Acceleration and Transition to Detonation in Benzene-Air Mixtures. *Combustion & Flame*, 115:424–436, 1998.
- [KM86] G.W. Koroll und S.R. Mulpuru. The Effect of Dilution with Steam on the Burning Velocity and Structure of Premixed Hydrogen Flames. In *21st (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1811–1819. The Combustion Institute, 1986.
- [KMAD99] M.S. Kuznetsov, I.D. Matsukov, V.I. Alekseev und S.B. Dorofeev. Photographic Study of Unstable Turbulent Flames in Obstructed Channels. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-932217-01-2.
- [KO99] A.M. Khokhlov und E.S. Oran. Multidimensional Numerical Simulations of the Amplification of Energy Release in Flames Caused by Shock-Flame Interactions. In *Proceedings of the 22nd Int. Symp. on Shock Waves (ISSW22)*, London, 1999. ISBN 085432-706-1.
- [Koc92] A. Koch. *Verbrennungsanalyse von turbulenten und laminaren Flammen mit schmalbandigen EXCIMER-Lasern*. Dissertation, Max-Planck-Institut für Strömungsforschung Göttingen, 1992.
- [KOCW99] A.M. Khokhlov, E.S. Oran, A.Y. Chtchelkanova und J.C. Wheeler. Interaction of a Shock With a Sinusoidally Perturbed Flame. *Combustion & Flame*, 117:99–116, 1999.
- [Kol41a] A.N. Kolmogorov. The Local Structure of Turbulence in Incompressible Viscous Fluid for very Large Reynolds Numbers. In *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, vol. 30, pp. 299–303, 1941.
- [Kol41b] A.N. Kolmogorov. The Local Structure of Turbulence in Incompressible Viscous Fluid for very Large Reynolds Numbers. In *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, vol. 31, pp. 538–541, 1941.
- [Kol41c] A.N. Kolmogorov. The Local Structure of Turbulence in Incompressible Viscous Fluid for very Large Reynolds Numbers. In *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, vol. 32, pp. 19–21, 1941.
- [Kon00] A.A. Konnov. Detailed Reaction Mechanisms for Small Hydrocarbons Combustion. Release 0.5. <http://homepages.vub.ac.be/~akonnov/>, 2000.
- [KOT99] A.M. Khokhlov, E.S. Oran und G.O. Thomas. Numerical Simulation of Deflagration-to-Detonation Transition: The Role of Shock-Flame Interactions in Turbulent Flames. *Combustion & Flame*, 117:323–339, 1999.

- [KOW97] A.M. Khokhlov, E.S. Oran und J.C. Wheeler. A Theory of Deflagration-to-Detonation Transition in Unconfined Flames. *Combustion & Flame*, 108:503–517, 1997.
- [KRM89] R.J. Kee, F.M. Rupley und J.A. Miller. CHEMKIN-II: A FORTRAN Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas-Phase Chemical Kinetics. Technical Report SAND89-8009, Sandia National Laboratory, 1989.
- [KS97] M. Kaneshige und J.E. Shepherd. Detonation Database. Technical Report FM97-8, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, 1997. Elektronisches Archiv: http://www.galcit.caltech.edu/detn_db/html/.
- [Kuo86] K.K. Kuo. *Principles of Combustion*. Wiley & Sons, New York, 1986.
- [KZ48] S.M. Kogarko und Y.B. Zel'dovich. Detonation of Gaseous Mixtures. *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 63:553–556, 1948.
- [Lan44] L. Landau. On the Theory of Slow Combustion. *Acta Physicochim.*, 19:77, 1944.
- [LC99] J. Luque und D.R. Crosley. LIFBASE: Database and Spectral Simulation Program (Version 1.5). Technical Report MP-99-009, SRI International, 1999.
- [LDvT81] J.-C. Libouton, M. Dormal und P.J. van Tiggelen. In *Dynamics of Explosion*, vol. 76 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 358ff. 1981.
- [Lee84] J.H.S. Lee. Dynamic Parameters of Gaseous Detonations. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 16:311–336, 1984.
- [Lee86] J.H.S. Lee. On the Transition from Deflagration to Detonation. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 3–18. AIAA, 1986.
- [Lew54] B. Lewis. Discussion. In *Selected Combustion Problems, AGAD*, pp. 177, London, 1954. Butterworths Scientific Publications.
- [LKC84] J.H.S. Lee, R. Knystautas und C.K. Chan. Turbulent Flame Propagation in Obstacle-Filled Tubes. In *20th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1663–1672. The Combustion Institute, 1984.
- [LKF84] J.H.S. Lee, R. Knystautas und A. Freiman. High Speed Turbulent Deflagration and Transition to Detonation in H₂-Air Mixtures. *Comb. & Flame*, 56:227–239, 1984.
- [LKM⁺88] A.E. Lutz, R.J. Kee, J.A. Miller, H.A. Dwyer und A.K. Oppenheim. Dynamic Effects of Autoignition Centers for Hydrogen and C_{1,2}-Hydrocarbon Fuels. In *22nd Symp. (Int.) Combust.*, pp. 1683–1693, 1988.

- [LKS⁺92] H. Langfellner, G. Kremb, A. Schnellbögl, J. Betz, K.F. Renk und W. Prettl. Giant Voltages upon Surface Heating in Normal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Films Suggesting an Atomic Layer Thermopile. *Appl. Phys. Lett.*, 60, 1992.
- [LKY78] J.H.S. Lee, R. Knystautas und N. Yoshikawa. Photochemical Initiation of Gaseous Detonation. *Acta Astronautica*, 5:971–982, 1978.
- [LM80] J.H.S. Lee und I.O. Moen. The Mechanism of Transition from Deflagration to Detonation in Vapor Cloud Explosions. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 6:359–389, 1980.
- [LM83] D.D.S. Liu und R. MacFarlane. Laminar burning velocities of Hydrogen-Air-Steam Flames. *Combustion & Flame*, 49:59–71, 1983.
- [LOK92] M.H. Lefebvre, E.S. Oran und K. Kailasanath. Computations of Detonation Structure: The Influence of Model Input Parameters. Technical Report NRL/MR/4404–92-6961, Naval Research Laboratory, Washington, 1992.
- [LOKvT93] M.H. Lefebvre, E.S. Oran, K. Kailasanath und P.J. v. Tiggelen. The Influence of the Heat Capacity and Diluent on Detonation Structure. *Combustion & Flame*, 95:206–218, 1993.
- [LWO95] M.H. Lefebvre, J.W. Weber und E.S. Oran. Numerical Simulations of a Marginal Detonation: Wave Velocities and Transverse Wave Structure. To appear in book *Fluid Mechanics and Applications*, Eds.: B. Deshaies and L.F. da Silva, 1995.
- [Mar64] G.H. Markstein, Hrsg. *Nonsteady Flame Propagation*. Pergamon Press, 1964.
- [May01] F. Mayinger. Fundamentals of Holography and Interferometry. In F. Mayinger und O. Feldmann, Hrsg., *Optical Measurements. Techniques and Applications*. Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 2001.
- [MBEJ89] I.O. Moen, D. Bjerketvedt, T. Engenbretsen und A. Jenssen. Transition to Detonation in a Flame Jet. *Combustion & Flame*, 75:297–308, 1989.
- [McI95] A.C. McIntosh. Influence of Pressure Waves on the Initial Development of an Explosion Kernel. *AIAA Journal*, 33/9:1651–1658, 1995.
- [MDKL81] I.O. Moen, M. Donato, R. Knystautas und J.H.S. Lee. The Influence of Confinement on the Propagation of Detonation Near the Detonability Limit. In *18th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1615–1622. The Combustion Institute, 1981.
- [Mes70] Y.Y. Meshkov. Instability of a Shock Wave Accelerated Interface Between Two Gases. NASA Technical Transactions NASA TTF-13; ursprgl. *Izv. Akad. Nauk. SSSR Mekh. Zhidk. Gaza* 4 (1969), 1970.
- [MF01] F. Mayinger und O. Feldmann, Hrsg. *Optical Measurements. Techniques and Applications*. Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 2001.

- [Mos97] V. Moser. *Simulation der Explosion magerer Wasserstoff-Luft-Gemische in großskaligen Geometrien*. Dissertation, RWTH Aachen, 1997.
- [MST⁺86] I.O. Moen, A. Sulmistras, G.O. Thomas, D. Bjerketvedt und P.A. Thibault. Influence of Cellular Regularity on the Behaviour of Gaseous Detonations. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 220–243. AIAA, 1986.
- [MW88] U. Maas und J. Warnatz. Ignition Processes in Hydrogen-Oxygen Mixtures. *Combust. and Flame*, 74:53, 1988.
- [Ora99] E.S. Oran. The Structure of Propagating Detonations. In G.D. Roy, S.M. Frolov, K. Kailasanath und N.N. Smirnov, Hrsg., *Gaseous & Heterogeneous Detonations: Science to Applications*. ENAS Publishers, Moskau, 1999.
- [OYB⁺82] E.S. Oran, T.R. Young, J.P. Boris, J.M. Picone und D.H. Edwards. A Study of Detonation Structure: The Formation of Unreacted Gas Pockets. In *19th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 573–582. The Combustion Institute, 1982.
- [Pan97] E. Pantow. *Ausbreitung und Zerfall von Detonationsfronten in Wechselwirkung mit technischen Strukturen*. VDI Fortschrittberichte, Reihe 7:Strömungstechnik, Nr. 330. VDI Verlag, Düsseldorf, 1997.
- [Pet86] N. Peters. Laminar Flamelet Concepts in Turbulent Combustion. In *21st (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1231–1250. The Combustion Institute, 1986.
- [Pet91] N. Peters. Numerical Approaches to Combustion Modeling. In E.S. Oran und J.A. Boris, Hrsg., *Prog. Astronautics Aeronautics*, vol. 135, pp. 155–182. AIAA, 1991.
- [Pet92] N. Peters. Fifteen Lectures on Laminar and Turbulent Combustion. In *ERCFTAC Summer School*, Aachen, Germany, September 1992.
- [Pet97] N. Peters. Four Lectures on Turbulent Combustion. In *ERCFTAC Summer School*, Aachen, Germany, September 1997.
- [PKL86] O. Peraldi, R. Kystautas und J.H.S. Lee. Criteria for Transition to Detonation in Tubes. In *21st (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1629–1637. The Combustion Institute, 1986.
- [PS99] U.J. Pfahl und J.E. Shepherd. Jet Initiation of Deflagration and Detonation in Stoichiometric H₂-O₂-N₂ Mixtures. Explosion Dynamics Laboratory Report FM99-1, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 1999.
- [PW89] N. Peters und F.A. Williams. Premixed Combustion in a Vortex. In *22nd (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 495–503. The Combustion Institute, 1989.

- [Rey86] W.C. Reynolds. The Element Potential Method for Chemical Equilibrium Analysis: Implementation in the Interactive Program STANJAN, Version 3. Technical report, Dept. of Mechanical Engineering, Stanford, CA, 1986.
- [Ric60] R.D. Richtmyer. Taylor Instability in Shock Wave and Flame Interactions. *Communications in Pure and Applied Mathematics*, 13:291–319, 1960.
- [Ruc87] B. Ruck. *Laser-Anemometrie*. AT-Fachverlag, Stuttgart, 1987.
- [RYRV97] W. Reckers, G. Yongwei, E.W. Rothe und H. Voges. Rayleigh Scattering of Excimer Laser Light from Some Simple Molecules at 193 nm and 258 nm: The Effect of Polarization upon Imaging Diagnostics. *Applied Spectroscopy*, 51/7:1012–1016, 1997.
- [SB78] J. Stoer und R. Bulirsch. *Einführung in die numerische Mathematik*, vol. 1. Springer Verlag, Berlin, 1978. ISBN 3-540-05750-1.
- [SC74] R.A. Strehlow und A.J. Crooker. The Structure of Marginal Detonation Waves. *Acta Astronautica*, 1:303–315, 1974.
- [Sch34] H. Schardin. Das Toeplersche Schlierenverfahren. *VDI-Forschungsheft*, 367, 1934.
- [Sch65] G.L. Schott. Observation of the Structure of Spinning Detonation. *Phys. Fluids*, 8:850–865, 1965.
- [Sch79] H. Schlichting. *Boundary Layer Theory*. McGraw-Hill, New York, 1979.
- [Sch88] S. Schöffel. *Berechnung der Dynamik zellularer Detonationsstrukturen ausgehend vom Zeldovich-Döring-v-Neumann-Modell*. VDI Fortschrittberichte, Reihe 7:Strömungstechnik, Nr. 142. VDI Verlag, Düsseldorf, 1988.
- [Sch00] E. Schultz. *Detonation Diffraction Through an Abrupt Area Expansion*. Dissertation, California Institute of Technology, 2000.
- [Shc56] K.I. Shchelkin. Phenomena in the Vicinity of Detonation Formation in a Gas. *Soviet Physics JETP*, pp. 296–300, 1956.
- [Shc59] K.I. Shchelkin. Two Cases of Unstable Combustion. *Zhur. Eksptl. Teoret. Fiz.*, 36:600–606, 1959.
- [She] J.E. Shepherd. Notes on PC-Chemkin and ZND, undated.
- [She86] J.E. Shepherd. Chemical Kinetics of Hydrogen-Air-Diluent Detonations. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 263–293. AIAA, 1986.
- [She99] J.E. Shepherd. Turbulence Behind the Front. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-932217-01-2.

- [She00] J.E. Shepherd. Persönliches Gespräch. California Institute of Technology, Pasadena, CA, April 2000.
- [SL92] J.E. Shepherd und J.H.S. Lee. On the Transition from Deflagration to Detonation. In Hussaini M.Y., Kumar A. und Voigt R.G., Hrsg., *Major Research Topics in Combustion*, pp. 439–487. Springer Verlag, New York, 1992.
- [Sle90] S.E. Slezak. Flame Acceleration and Deflagration-to-Detonation Transition in Hydrogen-Air-Steam Mixtures. Lecture Notes for the USNRC Severe Accident Partners Meeting, Mai 1990. Long Islang, NY.
- [SLT⁺92] T. Scarinci, J.H.S. Lee, G.O. Thomas, R. Bambrey und D.H. Edwards. Amplification of a Pressure Wave by Its Passage Through a Flame Front. In A.L. Kuhl, J.-C. Leyer, A.A. Borisov und W.A. Sirignano, Hrsg., *Dynamics of Heterogeneous Combustion and Reacting Systems*, vol. 152 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 3–24. AIAA, 1992.
- [SM99] K. Stephan und F. Mayinger. *Thermodynamik*, vol. 2, Mehrstoffsystem und chemische Reaktionen. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 14. Auflage, 1999.
- [SMMT86] J.E. Shepherd, I.O. Moen, S.B. Murray und P.A. Thibault. Analysis of the Cellular Structure of Detonations. In *21st (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1649–1658. The Combustion Institute, 1986.
- [SS99] E. Schultz und J.E. Shepherd. Detonation Analysis Using Detailed Reaction Mechanisms. In *Proceedings of the 22nd Int. Symp. on Shock Waves (ISSW22)*, London, 1999. ISBN 085432-706-1.
- [SS00] E. Schultz und J.E. Shepherd. Validation of Detailed Reaction Mechanisms for Detonation Simulation. Explosion Dynamics Laboratory Report FM99-5, Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 2000.
- [ST65] K.I. Shchelkin und Y.K. Troshin. *Gasdynamics of Detonations*. Mono Book Corp., Baltimore, 1965.
- [ST91] D.W. Stamps und S.R. Tieszen. The influence of initial pressure and temperature on hydrogen-air-diluent detonations. *Combust. and Flame*, 83(3):353–364, 1991.
- [SW79] L.F. Shampine und H.A. Watts. DEPAC – Design of a User Oriented Package of ODE Solvers. Technical Report SAND79-2374, Sandia National Laboratory, 1979.
- [SW86] D.B. Spalding und J.Z.Y. Wu. The Landau and Rayleigh-Taylor Instabilities in Turbulent Flame Propagation. *Physicochemical Hydrodynamics*, 7:353–384, 1986.

- [SW87] D.B. Spalding und J.Z.Y. Wu. Numerical Studies of Propagating Flames Exhibiting the Landau and Rayleigh-Taylor Instabilities. *Physicochemical Hydrodynamics*, 9:479–500, 1987.
- [SWS99] E. Schultz, E. Wintenberger und J.E. Shepherd. Investigation of Deflagration to Detonation Transition for Application to Pulse Detonation Engine Ignition Systems. In *Proceedings of the 16th JANNAF Propulsion Symposium*. Chemical Propulsion Information Agency, 1999.
- [Tay35] G. Taylor. Statistical Theory of Turbulence-I/II. In *Proc. of the Royal Society of London*, A141, pp. 421–464, 1935.
- [Tay49] G. Taylor. The Instability of Liquid Surfaces when Accelerated in a Direction Perpendicular to their Planes. In *Proc. of the Royal Society of London*, A201, pp. 192–197, 1949.
- [TH91] T. Tsuruda und T. Hirano. Local Flame Front Disturbance Development Under Acceleration. *Combust. and Flame*, 84:66–72, 1991.
- [TL87] H. Tennekes und J.L. Lumley. *A First Course in Turbulence*. MIT Press, Cambridge, Massachusetts, 1987.
- [TLK88] A. Teodorczyk, J.H.S. Lee und R. Knystautas. Propagation Mechanism of Quasi-Detonations. In *22nd (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1723–1731. The Combustion Institute, 1988.
- [TLK90] A. Teodorczyk, J.H.S. Lee und R. Knystautas. The Structure of Fast Turbulent Flames in Very Rough, Obstacle-Filled Channels. In *23rd (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 735–741. The Combustion Institute, 1990.
- [Toe64] A. Toepler. *Beobachtungen nach einer neuen optischen Methode*. Max Cohen und Sohn, Bonn, 1864.
- [TSB⁺86] S.R. Tieszen, M.P. Sherman, W.B. Benedick, J.E. Shepherd, R. Knystautas und J.H.S. Lee. Detonation Cell Size Measurements in Hydrogen-Air-Steam Mixtures. In J.R. Bowen und J.C. Leyer, Hrsg., *Dynamics of Explosion*, vol. 106 of *Prog. in Astronautics and Aeronautics*, pp. 205–219. AIAA, 1986.
- [TSBB87] S.R. Tieszen, M.P. Sherman, W.B. Benedick und M. Berman. Detonability of H₂-Air-Diluent Mixtures. Technical Report NUREG/CR-4905, SAND85-1263, Sandia National Laboratories, 1987.
- [TSBJ97] G.O. Thomas, C.J. Sands, R.J. Bambrey und S.A. Jones. Experimental Observations of the Onset of Turbulent Combustion Following a Shock-Flame Interaction. In *Proc. of the 16th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, pp. 2–5, Krakau, 1997. ISBN 83-7108-028-X.
- [UO66] P.A. Urtiew und A.K. Oppenheim. Experimental Observations of the Transition to Detonation in an Explosive Gas. In *Proc. Roy. Soc. London*, vol. A295, pp. 13–28. The Royal Society, 1966.

- [VMT69] B.V. Voytsekhovskiy, V.V. Mitrofanov und M.Y. Tipchian. Investigation of the Structure of Detonation Waves in Gases. In *12th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 829–837. The Combustion Institute, 1969.
- [VMT87] A.A. Vasiliev, V.V. Mitrofanov und M.E. Topchian. *Fizika Gorenija i Vzryva*, 23:109–131, 1987.
- [vN42] J. v. Neumann. Progress Report on Theory of Detonation Waves. Technical report, Office of Scientific Research and Development, OSDR Rep. No. 549, Proj. Rep. No. 238, 1942.
- [vT99] P.J. v. Tiggelen. Experimental Aspects on Detonation Cells: Past, Present and Future. In *Proc. of the 17th Int. Coll. on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems (ICDERS)*, Heidelberg, 1999. ISBN 3-932217-01-2.
- [WBO96] D.N. Williams, L. Bauwens und E.S. Oran. Detailed Structure and Propagation of Three-Dimensional Detonations. In *26th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 2992–2998. The Combustion Institute, 1996.
- [Wes82a] C.K. Westbrook. Chemical Kinetics of Hydrocarbon Oxidation in Gaseous Detonations. *Combust. and Flame*, 46:191–210, 1982.
- [Wes82b] C.K. Westbrook. Hydrogen Oxidation Kinetics in Gaseous Detonations. *Combust. Science and Technology*, 29:67–81, 1982.
- [Wet93] F. Wetzel. *Untersuchung der Mechanismen der Detonationsentstehungs- und Detonationsausbreitungsvorgängen*. VDI Fortschrittberichte, Reihe 7:Strömungstechnik, Nr. 228. VDI Verlag, Düsseldorf, 1993.
- [Whi61] D.R. White. Turbulent Structure of Gaseous Detonations. *The Physics of Fluids*, 4/4:465–480, 1961.
- [Wil85] F.A. Williams. *Combustion Theory*. Benjamin Cummings, 2. Auflage, 1985.
- [WKS81] P. Wolanski, C.W. Kauffman, M. Sichel und J.A. Nicholls. Detonations of Methane-Air Mixtures. In *18th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1651–1660. The Combustion Institute, 1981.
- [WMD97] J. Warnatz, U. Maas und R.W. Dibble. *Verbrennung*. Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 1997. ISBN 3-540-61546-6.
- [Wol99] J. Wolfrum. Lasers in Combustion: From Basic Theory to Practical Devices. In *27th (Int.) Symposium on Combust.*, pp. 1–41. The Combustion Institute, 1999.
- [Zel50] Y.B. Zel'dovich. On the theory of the propagation of detonation in gaseous systems. NACA TM, No. 1261, ursprgl. JETP10 (1940), 1950.

- [ZTM98] F. Zhang, P.A. Thibault und S.B. Murray. Transition from Deflagration to Detonation in an End Multiphase Slug. *Combustion & Flame*, 114:13–25, 1998.
- [ZWB87] H. Zhong-Wei und X. Bin. Relation Between Cell Size and Detonation Parameters in Overdriven Gaseous Detonations. *Combust. and Flame*, 67:95–98, 1987.

A Detonationszellweiten

Die Detonationszellweiten der im Rahmen dieses Projekts verwendeten Gemischzusammensetzungen sind in der Folge insoweit dargestellt, als dass sie für das Verständnis der beschriebenen Messungen erforderlich sind. Für weitergehende Informationen sei an dieser Stelle auf die entsprechenden Literaturverweise sowie auf die Datenbank von Keneshige und Shepherd [KS97] verwiesen.

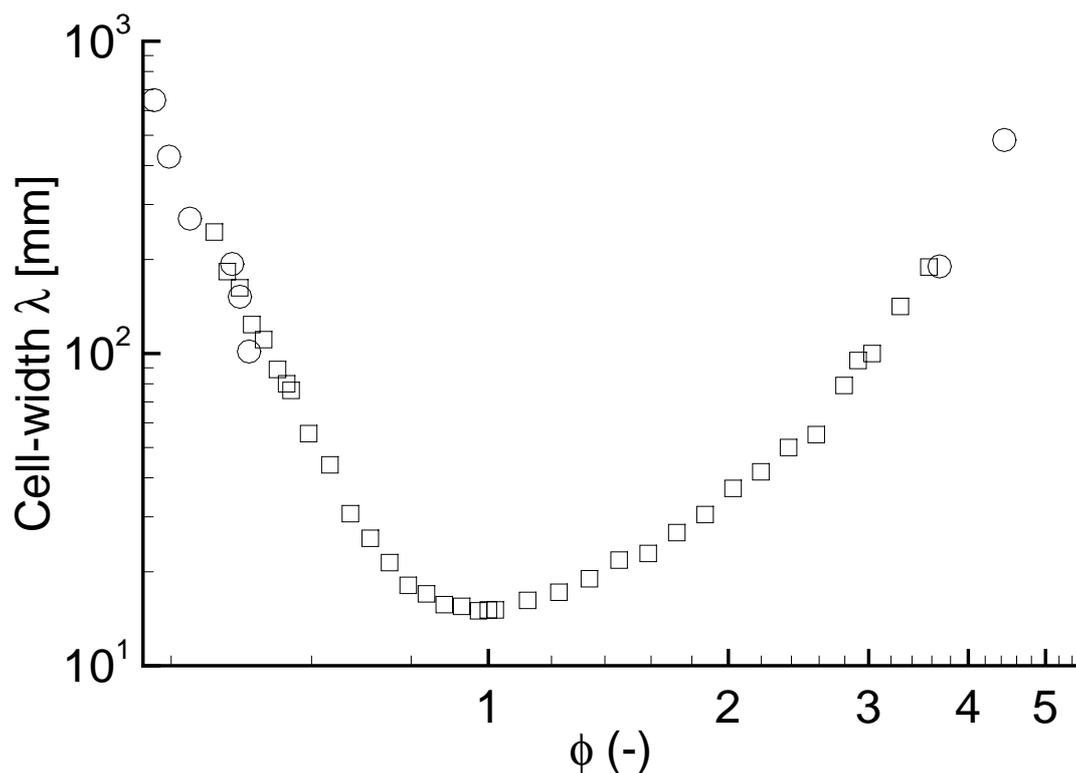


Abbildung A.1: Detonationszellweiten für Wasserstoff-Luft Gemische unter Umgebungsbedingungen. Rechtecke: Daten von Guirao et al. [GKL⁺82], Kreise: Daten von Tieszen et al. [TSB⁺86].

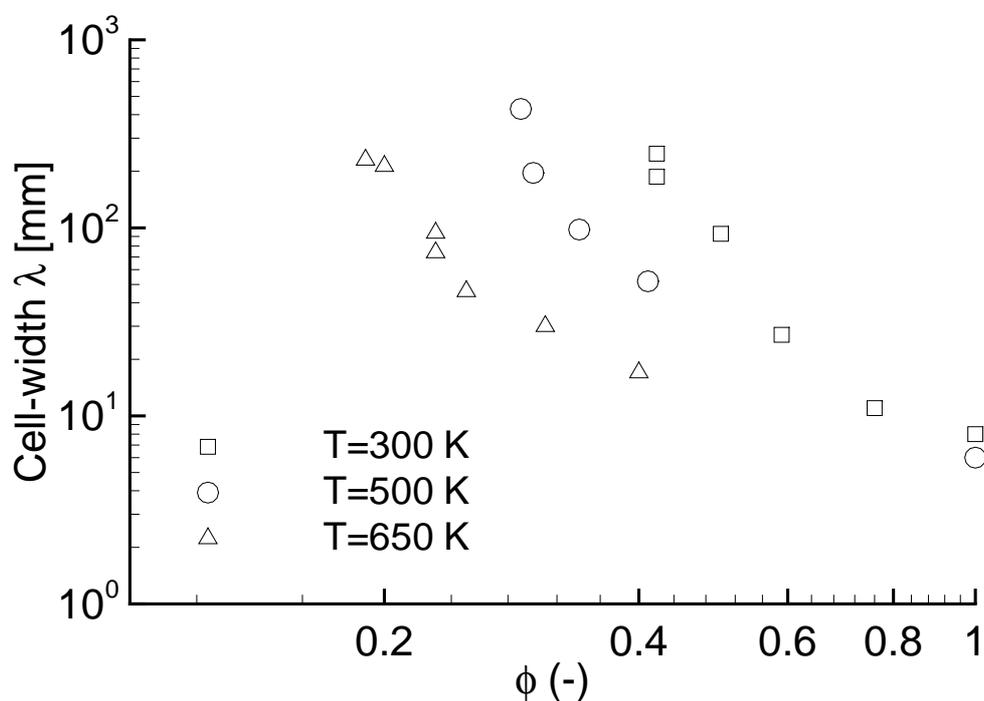


Abbildung A.2: Detonationszellweiten für Wasserstoff-Luft Gemische unter Umgebungsdruck für erhöhte Temperatur. Daten von Ciccarelli et al. [CGB⁺97].

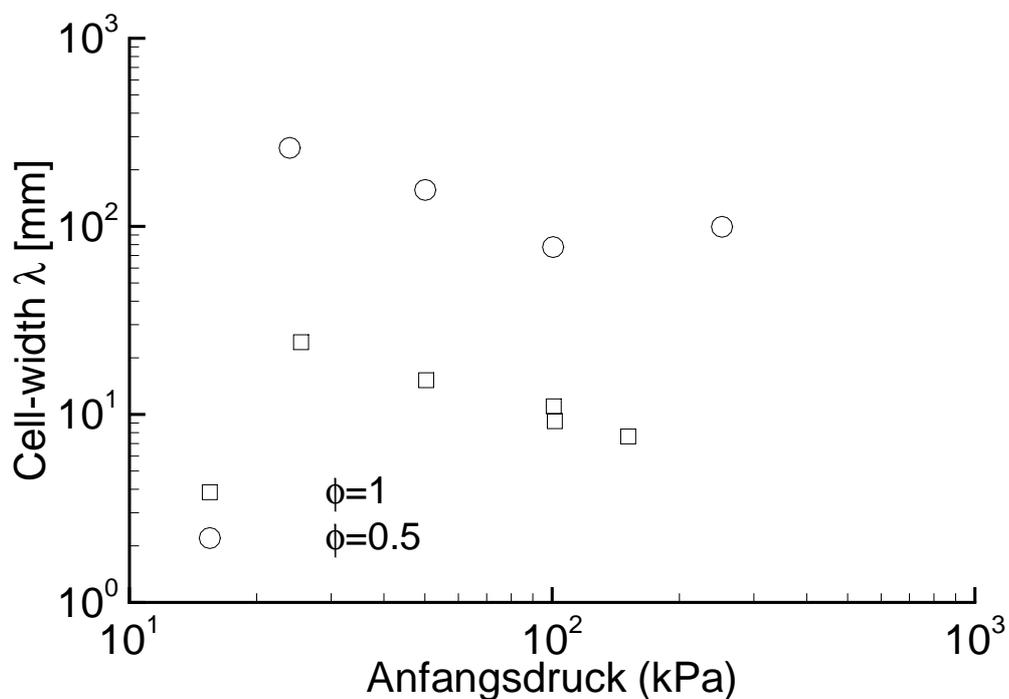


Abbildung A.3: Detonationszellweiten für Wasserstoff-Luft Gemische unter Umgebungstemperatur in Abhängigkeit des Anfangsdrucks. Daten von Stamps und Tieszen [ST91].

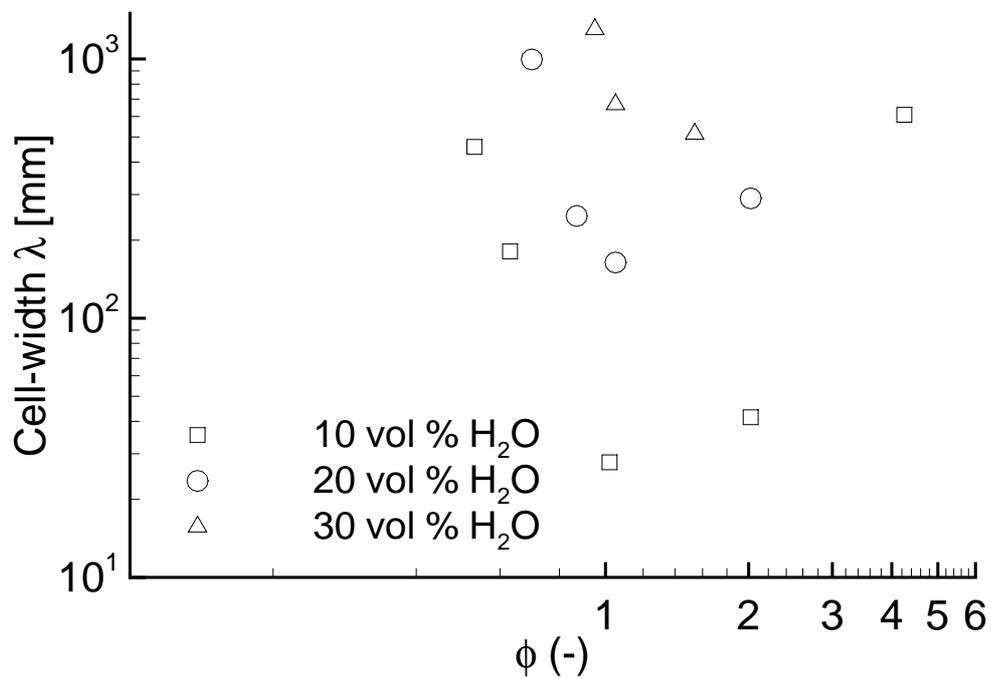


Abbildung A.4: Detonationszellweiten für Wasserstoff-Luft Gemische und Wasserdampf als Additiv bei Umgebungsdruck und einer Temperatur von 393 K. Daten von Stamps und Tieszen [ST91].

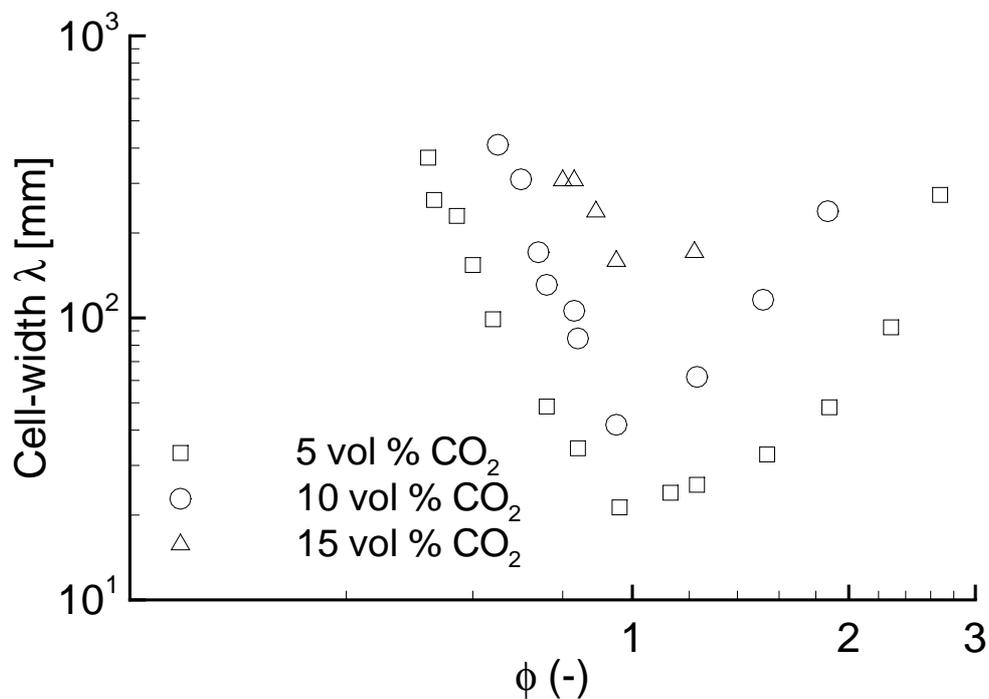


Abbildung A.5: Detonationszellweiten für Wasserstoff-Luft Gemische und Kohlendioxid als Additiv bei Umgebungsbedingungen. Daten von Tieszen et al. [TSBB87].

B Umrechnung Stöchiometrieverhältnis-Volumenanteil

B.1 Wasserstoff-Luft Gemische

Der Volumenanteil von Wasserstoff am gesamten Wasserstoff-Luft Gemisch γ_{H_2} läßt sich mit

$$\phi = \frac{\gamma_{\text{H}_2}}{0.42(1 - \gamma_{\text{H}_2})} \quad (\text{B.1})$$

in das dimensionslose Stöchiometrieverhältnis ϕ umrechnen. Abbildung B.1 zeigt die graphische Darstellung dieser Funktion.

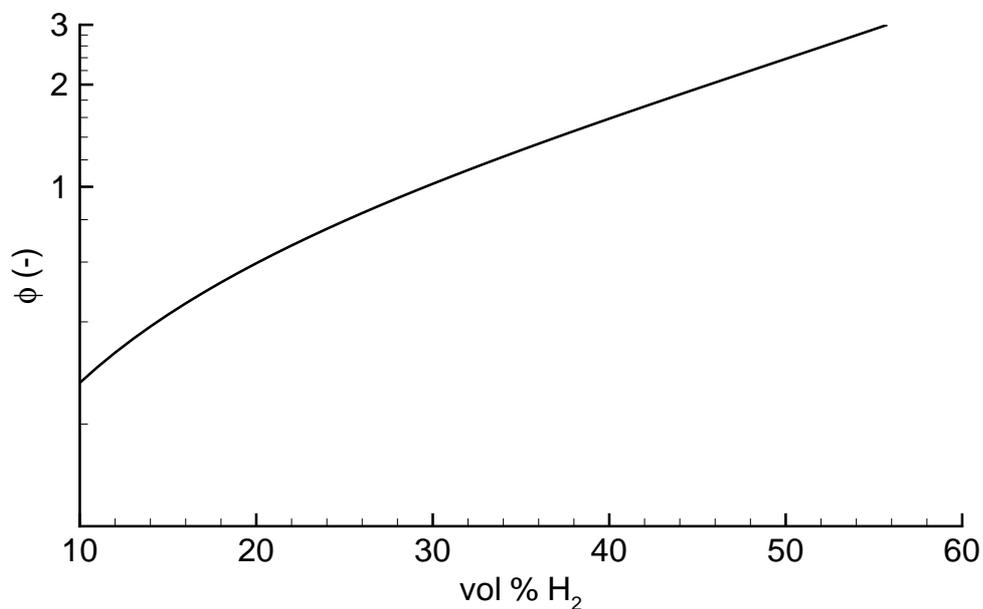


Abbildung B.1: Umrechnung Stöchiometrieverhältnis-Volumenanteil für Wasserstoff-Luft Gemische.

B.2 Hythane-Gemische

Der Brennstoffanteil am gesamten Hythane Gemisch läßt sich mit

$$\phi = \frac{\gamma_{\text{H}_2} + 4\gamma_{\text{CH}_4}}{0.42(1 - \gamma_{\text{H}_2} - \gamma_{\text{CH}_4})} \quad (\text{B.2})$$

in das dimensionslose Stöchiometrieverhältnis ϕ umrechnen. Abbildung B.2 zeigt die Anteile von Wasserstoff und Methan bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Stöchiometrieverhältnisse.

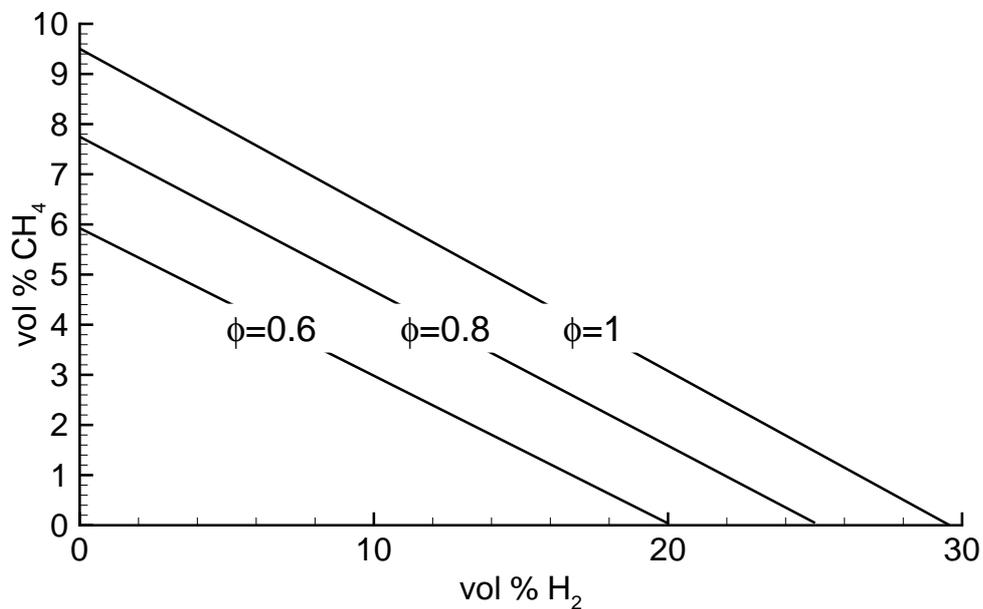


Abbildung B.2: Anteile von Wasserstoff und Methan bei konstanten Stöchiometrieverhältnisse.

B.3 H₂-CO-Luft Gemische

Der Brennstoffanteil am gesamten H₂-CO-Luft Gemisch läßt sich mit

$$\phi = \frac{\gamma_{\text{H}_2} + \gamma_{\text{CO}}}{0.42(1 - \gamma_{\text{H}_2} - \gamma_{\text{CO}})} \quad (\text{B.3})$$

in das dimensionslose Stöchiometrieverhältnis ϕ umrechnen.

B.4 H₂-CO₂-Luft und H₂-H₂O-Luft Gemische

Befindet sich als Additiv ein nicht brennbares Gas (wie z.B. Kohlendioxid oder Wasserdampf) mit dem Volumenanteil γ_{dil} in dem Gemisch, so läßt sich der Brennstoffanteil mit

$$\phi = \frac{\gamma_{H_2}}{0.42(1 - \gamma_{H_2} - \gamma_{dil})} \quad (B.4)$$

in das dimensionslose Stöchiometrieverhältnis ϕ umrechnen.