Spektroskopische Untersuchung und Charakterisierung der Nah-Infrarot (NIR) Strahlung eines volumetrisches keramisches Porenbrenners

Spectroscopic investigation and characterization of the near infra-red (NIR) emissions of volumetric ceramic porous burners in operation

Vojislav Jovicic^{*,1,2}, Christoph Nienhaus¹, Ana Zbogar-Rasic¹, Antonio Delgado^{1,2}

¹ Lehrstuhl für Strömungsmechanik (LSTM), Universität Erlangen-Nürnberg

² Erlangen Graduate School in Advanced Optical Technologies (SAOT), Germany

* Kontakt: vojislav.jovicic@fau.de

Schlagworte: Verbrennung, Porenbrenner, NIR Strahlung, Spektroskopie Key words: Combustion, Porous Burner, NIR Emissions, Spectroscopy

Zusammenfassung

Volumetric ceramic porous burners, in which combustion takes place inside the cavities formed by surrounding solid porous inert matrix, have variety of proven advantages in comparison to the commercial free-flame combustors. Among others, volumetric ceramic porous burners can provide the highest thermal radiation output from all commercially available combustions.

Selection of ceramic material for porous matrix of the combustion zone, its thickness, porosity, form, etc. are significantly influencing properties of volumetric ceramic porous burner in operation especially heat radiation output. Unfortunately, there is almost no available data on the characterization of porous burner thermal radiation and influence of inlet conditions, materials, geometry, etc. on its spectrum.

This work presents results of spectroscopic investigation of near infra-red (NIR) radiation spectrum emitted by porous burners in operation. In the frame of this research three different materials were investigated as porous combustion zones; 10 ppi ZrO_2 and Si-SiC foams and packed bed made of d=15 mm Al₂O₃ spheres. Additionally, different thicknesses of tested structures h=15-45 mm were investigated. Tests were repeated for different air-fuel equivalence ratios λ =1,1-1,5 and different thermal loads in range from P=250-2500 kW/m².

Results have shown that similarity of measured characteristics. Each spectrum has a global maximum that shifts with increasing power and intensity from 1560 nm in the direction of 1550 nm. This suggests that the intensity profile corresponds to that of a gray body at the maximum.

Another finding is the strong influence of the exhaust gases to the NIR radiation spectrum. The effect is so great that sometimes there were almost no detected emissions. It has been shown that H_2O and CO are the strongest absorbents. Effects of other, intermediate combus-

tion products, such as CH, CH_2 , or OH were also detected due to the low optical density of used porous materials.

Einleitung

Seit Beginn des Industrialisierungszeitalters, nimmt die Verbrennungstechnik einen wichtigen Stellenwert in der modernen Gesellschaft ein. Ihre Einsatzorte stellen der Transport- oder Energieverarbeitungssektor dar. Hierbei nimmt, eine schadstoffarme und Effiziente Energiegewinnung aus Verbrennungsprozessen, in allen Industrie Sektoren, einen immer größeren Stellenwert ein. Mit dem Einsatz von inerten Porenbrennern hat sich hierzu in den letzten zwei Jahrzehnten eine Möglichkeit entwickelt, diesen stetig wachsenden Anforderungen gerecht zu werden. In dieser Art von Brennern ein Verbrennungsgas/Luft- Gemisch in einem inerten porösen Medium verbrannt. Bei diesen Medium handelt es sich häufig um Strukturen aus Hochleistungskeramiken oder Hochtemperaturmetallen. Durch das Einbringen eines inerten durchströmbaren Festkörpers in den Verbrennungsraum und folglich einer Verbrennung innerhalb des Porenkörpers kommt es einem intensiven Wärmeaustauch zwischen der Gasphase und der festen Porenstruktur. Hierdurch ergeben sich hinsichtlich der Verbrennungseigenschaften einige Vorteile. So können Porenbrenner im Vergleich zu Freiflammenbrennern kompakter ausgeführt werden, des Weiteren sind sie in einem größeren Leistungsbereich stufenlos anwendbar und besitzen niedrigere Schadstoffemissionen, homogenere Temperaturverteilungen, höhere Energiedichten, usw.

Ein Aspekt, der bei der Porenbrenner-Technologie bisher nicht genug im Fokus lag, ist die Art der Wärmeabgabe. Dabei ist die Wärmeabgabe durch Strahlung wohl der wichtigste Aspekt bei der Anwendung von Porenbrennern in der Gütererwärmung. Da jedes Gut aufgrund des atomaren und molekularen Aufbaus, bestimmte Strahlungsenergien besser aufnehmen kann, ist der Anteil der ungenutzten Strahlungsenergien relativ hoch. Dies kann man verbessern, indem man Strahlung nur in den für das Gut relevanten Bereichen ausstrahlt. Dazu ist die Kenntnis der Einflüsse auf die Abstrahlung nötig.

Ziel dieser Arbeit war es daher, die charakteristische Abstrahlung eines Brenners und die verschiedenen Einflüsse auf diese zu ermitteln. Einflussfaktoren waren dabei die Einstellungen des Brenners, wie z.B. verwendete Materialien oder dicke der Verbrennungszone. Den Anfang der Strahlungsuntersuchungen bei Porenbrennern bildet in dieser Arbeit die Untersuchung im NIR-Bereich. Über die Messung der Abstrahlung in einem festen Raumwinkel sollten des Weiteren eventuell Rückschlüsse über die gesamte abgestrahlte Energie eines Brenners gezogen werden und damit auch über das Verhältnis von Konvektion, Wärmeabgabe und Strahlung des Brenners sowie über die Effizienz eines Brenners.

Experimenteller Aufbau

Für den Versuch, wurde ein Porenbrenner mit Pécletzahl Stabilisierung gewählt (Abb.1.). Dazu wurde eine perforierte 20 mm hohe Al₂O₃-Flammensperre (Abb.2a) verwendet, deren Verbrennungszone stromabwärts folgte und mit der Oberfläche des Brenners abschloss. Der Innendurchmesser des Brenners bzw. der Außendurchmesser des Luftkanals und der verschiedenen Zonen betrug 70 mm. Die Zonen wurden mittels ca. 10 mm dicker Isoliermatte (Abb.1) axial in einem Edelstahlgehäuse fixiert. Als Porenstrukturen wurden SiSiC- (Abb.2b) und ZrO2-Schaumstrukturen mit einer Porendichte von 10 ppi



Pécletzahl Stabilisierung

und eine Al₂O₃-Kugelschüttung (Abb.2c) verwendet. Die Durchmesser aller Porenstrukturen betrugen 70 mm und die Dicken wurden von 15 bis 45 mm variiert.





Abbildung 3 zeigt den schematischen Aufbau des Versuchsstands mit allen Peripheriekomponenten. Für die Massenflussregelung wurden zwei Massenflusskontrollgeräte, eins für CH₄ (4) und eins für Luft (3), der Firma Bronkhorst verwendet, deren Genauigkeit etwa ± 1 % vom Maximalwert entsprach. Eine Steuerbox (15), der Firma Bronkhorst direkt am Regelstand wurde extern über eine LabVIEW-Sequenz angesteuert und die eingestellten Werte wurden am PC (16) zur Speicherung über die LabVIEW- Sequenz zurückgegeben.

Die Oberflächentemperatur des Brenners wurde mittels eines Quotienten-Pyrometers (9) ermittelt, welches auf das Zentrum der Brenneroberfläche ausgerichtet wurde. Dabei erfasst das Pyrometer die Abstrahlung des Brenners zu zwei unterschiedlichen Wellenlängen, die nah bei einander liegen. Dann gilt die Annahme, dass der Emissionsgrad für beide Leistungen einen nahezu gleichen Wert aufweist. Auf diesem Weg kann ohne genaue Kenntnis des Emissionsgrades $\epsilon(\lambda,T)$ der Porenstruktur auf die Temperatur zurück gerechnet werden.



- 1. Druckluft Netz (12bar)
- 2. Methanflasche (200 bar)
- 3. Luft MFC
- 4. CH₄ MFC
- 5. Mischungseingang
- 6. Porenbrenner
- 7. Abgassonde
- 8. Abgasanalysator
- 9. Pyrometer
- 10. Detektor-Linse
- 11. Spektrometer
- 12. PC
- 13. Δp-Sensor
- 14. Messverstärker
- 15. MFC Steuerbox
- 16. PC

Abb.3: Schematischer Aufbau des Versuchsstands mit allen Peripheriekomponenten

Die Steuerung und Speicherung des Versuchsablaufs erfolgte über eine LabView Sequenz am PC (16). Hierzu wurden die Luftzahl und die Leistung eingegeben und die nötigen Massenströme automatisch errechnet. Diese wurden über eine NI Datenbox an die eingesetzten Mass Flow Controller (MFC) eingestellt. Parallel erfolgte kontinuierlich, alle zwei Sekunden, eine Speicherung der Massenflüsse, der Luftzahlen, des Druckverlustes und der Oberflächentemperatur des Brenners, in einer Excel-Datei.

Zur Ermittlung der NIR-Spektren wurde der Detektor (10) Typ PSS-H-125 eines NIR-Spektrometers (11) Typ PSS 2120-GS1 oberhalb des Brenners in einem Abstand von ca. 890 mm und einem Winkel von ungefähr 15° zur Mittelachse des Brenners angebracht. Von dort wurde das Lichtsignal über ein Glasfaserkabel zum Spektrometer geleitet. Die Aufnahme der Spektren erfolgte manuell über einen zweiten PC (12), welcher die Messungen ebenfalls abspeicherte.

Experimenteller Ablauf

Bei der Versuchsdurchführung wurde je Versuchsaufbau (eine Dicke einer Porenstruktur) die Flächenlast des Brenners stufenweise von 250 kW/m² bis zu maximal 2500 kW/m² gesteigert. Die Stufengröße hing individuell vom Werkstoff und der damit verbunden Trägheit des Systems ab. Auf jeder Leistungsstufe wurden nun verschiedene Luftzahlen (λ =1,1/1,3/1,5) angesteuert und zu jeder Einstellung punktuell NIR-Spektren aufgenommen. Diese wurden mit den gespeicherten Daten der Leistungs- und Luftzahlregelung sowie der Oberflächentemperatur des Pyrometers verknüpft, um eine Auswertung zu ermöglichen. Die Aufbereitung der Ergebnisse und eine Diskussion sind im Folgenden abgebildet.

Ergebnisse und Diskussion

Zunächst wird die grundlegende Strahlungscharakteristik des Porenbrenners vorgestellt, dann die theoretische Abstrahlung eines schwarzen Strahlers bei gleicher Temperatur errechnet und in der Folge ein Vergleich dieser Abstrahlungen mit der des Porenbrenners gezogen. Dazu erfolgte auch eine Ermittlung der charakteristischen Unterschiede, die den Absorbanzen des Brenners und des Verbrennungsprozesses entsprechen.

Grundlegende Charakteristik

Die Grundlegende Strahlungscharakteristik eines Porenbrenners im NIR-Bereich wies für alle durchgeführten Experimente und Einstellungen qualitativ gleiche Merkmale und einen gleichen Intensitätsverlauf im Wellenlängenbereich von 1100 nm bis 2100 nm auf. So wird die Charakteristik in Abb.4a am Beispiel des 30 mm SiSiC- Schaums dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Intensitäten bei kleinen Wellenlängen niedrig sind, aber mit größeren Wellenlängen stetig steigen und bei ungefähr 1375 nm ein lokales Maximum erreichen. Daraufhin folgt ein lokales Minimum bei ca. 1414 nm und danach steigt die Intensität bis in einen Bereich von 1511 bis 1560 nm zu einem globalen Maximum an. Nach dem Maximum sinkt die Intensität bis ungefähr 1800 nm stetig um sich danach der x-Achse anzunähern. Zum Vergleich mit einem schwarzen Strahler, wurde in Abb.4b die theoretische Strahlungsverteilung eines schwarzen Strahlers ermittelt, wozu die gemessene Oberflächentemperatur für die Berechnung genutzt wurde. Es ist zu erkennen, dass teils starke Unterschiede im qualitativen Verlauf zwischen beiden Graphen bestehen und bei den Messergebnissen eher das Strahlungsverhalten eines selektiven Strahlers zu sehen ist.



Zu Beginn stand die Annahme, dass dies die Folge der Absorbanzen von den gasförmigen Stoffen im Abgas war und die Porenstruktur als schwarzer Strahler angesehen werden kann. Um dieses Phänomen zu untersuchen, wurden die Messergebnisse und die spezifische Abstrahlung eines schwarzen Strahlers je Versuchsaufbau normiert und in der Folge über der Wellenlänge direkt miteinander verglichen. Der Vergleich erfolgte unter der Annahme, dass beim Strahlungsmaximum der Messung ein Emissionskoeffizient $\epsilon(T) = 1$ vorlag. Für die erste Charakterisierung erfolgte daher die Ermittlung der Absorbanz als Differenz zwischen der dimensionslosen errechneten Schwarzkörperstrahlung zur normierten gemessenen Emissionsstrahlung. In Abb.4c sind die Bandenlagen einiger absorbierender Stoffe überder Absorbanzkurve der Messungen dargestellt. Im Wellenlängenbereich ab 1100 nm war die Absorbanz recht gering und sank bis 1350 nm ab um dann kurz auf einen Peak bei ca. 1410 nm anzusteigen. In der Folge fiel die Absorbanz wieder ab, bis bei etwas mehr als 1500 nm ein Minimum erreicht wurde. Es folgte ein starker Anstieg und die Absorbanz schien in diesem Bereich nahezu die gesamte Strahlung zu absorbieren. Anfangs erfolgte die Absorption scheinbar nur aufgrund von Zwischenprodukten der Elementarreaktionen. Die größten Absorbanden schienen jedoch H₂O und CO im Bereich von 1900 bis 2100 nm zu sein. Zudem lässt sich vermuten, dass im Bereich des Peaks bei 1410 nm Wasser und evtl. Glasanteile im Lichtleiter für die Absorbanz verantwortlich sind.

Der grundlegende Verlauf und die Entwicklung der Strahlungscharakteristik wird in der Folge für variable Flächenlasten in Abb.5a und für variable Luftzahlen in Abb.5b) dargestellt.





Anhand Abb.5a ist zu erkennen, dass bei steigender Flächenlast die Intensitäten nicht proportional zu dieser steigen und sich anstatt dessen einem Maximalwert anzunähern scheinen. Dies wurde auch durch die gemessenen Temperaturen belegt. Steigt bei der Verdoppelung der Flächenlast von 500 zu 1000 kW/m² die Intensität noch um 100%, so steigt sie beim Schritt von 1000 zu 1500 kW/m² um 30 % und von 1500 zu 2000 erfolgt dann ein Anstieg um ca. 15%.

Eine weitere Beobachtung ist, dass sich das globale Maximum bei steigender Leistung und Intensität in Richtung kleinerer Wellenlängen verschiebt und das lokale Minimum sowie das lokale Maximum bei der gleichen Wellenlänge bleiben. Anfangs lag das globale Maximum bei einer Wellenlänge von 1558 nm und am Ende bei 1507 nm. In Abb.5b kann man einen Abfall der Intensitäten mit steigender Luftzahl erkennen, dies ist auf den höheren Anteil an Luft, der sich kühlend auf die Verbrennungszone auswirkt, zurückzuführen.

Durch die hier sinkenden Intensitäten verschiebt sich, wie zu erwarten, das Strahlungsmaximum in Richtung größerer Wellenlängen. In Bezug auf Absorptionen ist in beiden Diagrammen zu sehen, dass im Bereich 1800 bis 2100 nm keine Verbesserung der Abstrahlung durch einen Betriebspunkt des Brenners erfolgt. In diesem Bereich scheint so gut wie keine Abstrahlung zu erfolgen. Im Bereich der Wellenlängen von 1100 bis 1350 nm ist mehr Abstrahlung vorhanden, welche auch mit der maximalen Abstrahlung steigt, wenn auch weiterhin im abgeschwächten Verhältnis zu der Steigerung der maximalen Abstrahlung. Das lokale Minimum bei 1409 nm steigt ebenso, aber Verhältnismäßig geringer als das Maximum.

Variable Dicken der Verbrennungszone

Als nächstes werden die Intensitätsverläufe für unterschiedliche Dicken der Verbrennungszone betrachtet. Dazu sind die Intensitäten zu aufsteigenden Flächenlasten für die SiSiC Schäume und einer Luftzahl von 1,1 in Abb.6 dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass die Intensitäten bei 500 kW/m² für h=15 mm und h=30 mm noch sehr nah beieinanderliegen bei 1000 kW/m² bewegt sich der Graph von h=15 mm dann weiter in Richtung der geringsten Intensität von h=45 mm. Dieser Trend erweitert sich bei 1500 kW/m².



Eine Erklärung für den Verlauf, die durch die theoretische Arbeit von Talukdar et al. [3] gestützt wird, könnte in der Gleichgewichtslage der konventionellen Wärmeübertragung und der Strahlung in der Porenstruktur liegen. Die Festkörpertemperatur ist bei h=15 mm noch geringer als die Temperatur des Abgases, so dass der konventionelle Anteil der Wärmeübertragung an die Porenstruktur groß ist. Dies ermöglicht eine relativ große Wärmeabstrahlung der Verbrennung an die Umgebung. Die Festköpertemperatur erreicht bei steigender Leistung dann bei h=15 mm schneller ein relatives Gleichgewicht mit der Abgastemperatur als bei h=30 mm, so dass die Struktur nicht mehr Energie aufnehmen kann und bei steigender Leistung keinen steigenden Beitrag an die Strahlung leisten kann. Im Bereich um die h=30 mm Struktur erreicht die Abgastemperatur dieses Gleichgewicht zwischen Strukturund Abgastemperatur bei einer höheren Flächenlast und die Strahlungsabgabe steigt stärker als bei der h=30 mm Struktur. Bei der h=45 mm Struktur scheint diese dann bereits so groß zu sein, dass das Gleichgewicht erst bei höheren Leistungen erreicht wird. Bei niedrigen Flächenlasten haben die Abgase auf dem Weg zur Oberfläche sowie der Festkörper an der Oberfläche womöglich schon so abgekühlt, dass die gemessenen Intensitäten am niedrigsten liegen. Ein Indiz dafür ist, dass die maximale Intensität von 1000 zu 1500 kW bei der h=45 mm Struktur um ungefähr 60% zulegt während bei der h=15 mm Struktur und der h=30 mm Struktur die Intensitäten nur noch um ca. 30% zunehmen.

Variable Werkstoffe der Verbrennungszone

Dieses Kapitel geht nun auf die eingesetzten Werkstoffe als Verbrennungszone ein. Es war anzunehmen, dass die meisten Unterschiede auf die unterschiedlichen Emissionskoeffizienten $\mathbf{E}(\mathbf{T})$ der jeweiligen Porenstruktur zurück zu führen sein sollten. So hat im Temperaturbereich von ungefähr 2000 K SiSiC den höchsten Wert mit 0,9, gefolgt von ZrO₂ mit 0,31 und Al₂O₃ mit 0,28. Die Emissivität von Al₂O₃ sinkt mit steigender Temperatur und nimmt Werte zwischen 0,63 und 0,26 an [4], [5], [6].

In Abb.7 sind dazu erneut für ansteigende Flächenlasten, einer konstanten Luftzahl von 1,1 und der jeweiligen 30 mm Verbrennungszone die gemessenen Intensitäten über den Wellenlängen abgebildet. Es ließ sich wider Erwarten erkennen, dass die Intensitäten von SiSiC und ZrO₂ bei der Flächenlast von 250 kW/m² eine ähnlich hohe maximale Intensität erreichten. Im globalen Maximum war die von SiSiC am Höchsten, aber beim lokalen Maximum vor dem lokalen Minimum ist der Graph von ZrO₂ höher. Die Al₂O₃Intensitäten lagen insgesamt, wie erwartet, um einiges unter den beiden anderen Graphen. Bei höheren Flächenlasten stieg die Kurve von SiSiC über die von ZrO₂ und der Abstand wurde größer. Die Distanz zu dem Graphen von Al₂O₃ stieg ebenfalls weiter stetig an.





Abb.7: Intensitätsverlauf verschiedener Verbrennungszonenwerkstoffe für eine konstante Luftzahl von 1,1, der jeweiligen h=30 mm Verbrennungszone und bei ansteigender Flächenlast von:
a) 250 kW/m²,
b) 500 kW/m²,
c) 1000 kW/m² und d) 1500 kW/m²

Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Paper wurde die grundlegende NIR Strahlungscharakteristik eines Porenbrenners bei verschiedenen Einstellungen (Werkstoff, Struktur, Dicke) erarbeitet und das Verhalten in Abhängigkeit von der Flächenlast und der Luftzahl dargelegt um einen Ansatz für spätere Untersuchungen zu bilden.

Die Charakteristik des eingesetzten Porenbrenners ist bei allen Einstellungen ähnlich. Es gibt ein globales Maximum, dass sich mit steigender Leistung und Intensität von 1560 nm in Richtung 1550 nm verschiebt. Dies lässt darauf schließen, dass der Intensitätsverlauf beim Maximum dem eines grauen Strahlers entspricht. So ist die Bestimmung der Emissionskoeffizienten eine Aufgabe, welche im nächsten Schritt folgen kann.

Eine weitere Erkenntnis war der starke Einfluss der Abgase auf die Abstrahlung. So erschien die Wirkung so groß, dass teilweise fast keine Emissionen detektiert werden konnten. In diesem Bezug waren wohl H₂O und CO die stärksten Absorbanden. Es könnten auch weitere Zwischenprodukte der Verbrennung, wie z.B. CH-Verbindungen, bereits innerhalb der Verbrennungszone detektiert worden sein, da die Materialien optisch nicht dicht genug sind. So scheint die optische Dichte der Werkstoffe auch eine mögliche Erklärung für das Verhältnis der gemessenen Intensitäten zu einander sein. Diese entspricht nicht in allen Betriebspunkten den, als Folge der Emissionskoeffizienten, erwarteten Unterschieden. Ein weiterer Ansatz die Reaktionseinflüsse und Abgaseinflüsse zu erforschen, wäre die Untersuchung mit unterschiedlichen Gasen.

Literatur

- [1] S. Kämmerer: "Entwicklung und Anwendung eines NIRS-basierten Routineverfahrens zur Analyse der relativen und absoluten Fettsäurezusammensetzung in Rind- und Schweinefleisch sowie die Untersuchung von Kandidatengenen für den bovinen Fettstoffwechsel", B. F. F. Jena, Hrsg., Jena, 2009.
- [2] I. Murray: "Scattered information: philosophy and practice of near infrared spectroscopy", Cordoba, Spain, 2003.
- [3] P. Talukdara, S. C. Mishraa, D. Trimis und F. Durst: "Heat transfer characteristics of a porous radiant burner under the influence of a 2-D radiation field", Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 84, p. 527–537, 2004.
- [4] S. Mößbauer: "Grundlagenuntersuchungen an porösen Flammenreaktoren zur Minimierung von Schadgasemissionen bei der vorgemischten Verbrennung", Bericht an die Max-Buchner-Forschungsstiftung, Bericht Nr. 592/E, Erlangen, 1999.
- [5] W. Schulle: "Feuerfeste Werkstoffe.: Feuerfestkeramik Eigenschaften, prüfstechnische Beurteilung, Werkstofftypen", Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie GmbH, Leipzig, 1990.
- [6] S. Diezinger: "Mehrstofffähige Brenner auf Basis der Porenbrennertechnik für den Einsatz in Brennstoffzellensystemen", Erlangen: Dissertation Universität Erlangen Nürnberg, 2006.