

Technische Universität München
Fakultät für Maschinenwesen
Lehrstuhl für Aerodynamik und Strömungsmechanik

Strömungsphysikalische Phänomene bei der gasdynamisch initiierten Partikelerzeugung

Marcus Giglmaier

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. Harald Klein
Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Nikolaus A. Adams
2. Prof. Dr. h.c. Hans G. Hornung, Ph. D.
California Institute of Technology, U.S.A.

Die Dissertation wurde am 10.07.2013 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Maschinenwesen am 05.09.2013 angenommen.

MARCUS GIGLMAIER

Baaderstrasse 31

80469 München

Germany

marcus.giglmaier@mytum.de

© Marcus Giglmaier, 2013

Alle Rechte, auch die des auszugsweisen Nachdrucks, der Vervielfältigung und Verbreitung in besonderen Verfahren wie fotomechanischer Nachdruck, Fotokopie, Mikrokopie, elektronische Datenaufzeichnung einschließlich Speicherung und Übertragung auf weitere Datenträger sowie Übersetzung in andere Sprachen, behält sich der Autor vor.

Juli 2013

Typesetting **L^AT_EX**

DANKSAGUNG

Die vorliegende Arbeit entstand in den Jahren 2009 bis 2013 während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Aerodynamik und Strömungsmechanik der Technischen Universität München. Ich möchte mich an dieser Stelle bei all denjenigen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Nikolaus A. Adams für die hervorragende Betreuung und die fachliche Unterstützung. Vor allem möchte ich mich jedoch für das entgegengebrachte Vertrauen und die kreativen Freiräume bedanken, wodurch die Arbeit immer besonders angenehm, reizvoll und spannend war.

Ich möchte mich bei Prof. Dr. h.c. Hans G. Hornung (Ph. D) herzlich für die Begutachtung meiner Arbeit bedanken, und dass er den weiten Weg auf sich genommen hat, um das Koreferat für meine Prüfung zu übernehmen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Harald Klein sei für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes gedankt.

Allen Freunden und Kollegen am Lehrstuhl möchte ich meinen aufrichtigen Dank für die freundschaftliche Atmosphäre und die bestmögliche Zusammenarbeit aussprechen.

Besonderer Dank gilt Steffen Schmidt, der mich für die Gasdynamik begeistert hat. Die fachlichen Diskussionen beim Italiener sind bis heute lehrreich, motivierend und fröhlich. Im selben Maße möchte ich meinem Vorgänger Dr. Nisar Al-Hasan danken, der mir bei den Schwierigkeiten am Anfang der Promotion und beim Einstieg in das GiP-Projekt immer unterstützend zur Seite stand. Seine Motivation und Arbeitsweise hat nicht nur innerhalb des Projekts für den entsprechenden Antrieb gesorgt. Dr. Stefan Hickel ist, kurz gesagt, nicht nur fachlich eine Bereicherung für das Leben am Lehrstuhl und außerhalb.

Meinem Bürokollegen Matthias Thalhamer möchte ich für seine Hilfe und seine Geduld bei IT-Problemen, vor allem aber für seine unterhaltsamen Kommentare danken. Der fachübergreifende Austausch mit Michael Mihatsch hat zu vielen wertvollen Erkenntnissen verholfen und für einen kurzweiligen Büroalltag gesorgt. Mein Nachfolger Frederik Quaatz ist nicht weniger als ein Allround-Support, ohne dem vieles nicht möglich gewesen wäre.

Unter all den Studenten, mit denen ich in den letzten vier Jahren zusammenarbeiten durfte, möchte ich mich besonders bei Jan Matheis bedanken. Die Partikelmessungen in

Duisburg und der damit verbundene skurrile Aufenthalt im *Goldenen Hahn* bleibt mir in amüsanter Erinnerung.

Mein Dank gilt auch allen Partnern des DFG-Gemeinschaftsprojekts „Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion“. Vor allem die angenehme, fruchtbare und auch lehrreiche Zusammenarbeit mit Dr. Andreas Grzona, Dr. Alexander Weiß, Dr. Thomas Gawehn, Dr. Thomas Rakel, Ali Abdali und Dr. Manfred Danehl war mir stets eine Freude.

Abschließend möchte ich mich bei Angelica Bahlke für die unermüdliche und mit großer Sorgfalt durchgeführte Korrektur meines Manuskripts bedanken.

München, Oktober 2013

Marcus Giglmaier

KURZFASSUNG

Die „Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion“ (GiP) stellt ein grundlegend neues Verfahren der Nanopartikelproduktion dar. Während der sechs Jahre des DFG-geförderten Gemeinschaftsprojekts PAK75 wurde der Prozess in Zusammenarbeit mit fünf Universitäten, dem Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) und dem Industriepartner Evonic von der Idee über das Reißbrett bis hin zur produktionsfähigen Anlage entwickelt. Im Fokus der vorliegenden Arbeit stehen die numerischen Strömungssimulationen, die zur Klärung von Detailfragen hinsichtlich des auftretenden Pseudo-Stoßsystems sowie des Partikelwachstums durchgeführt wurden.

Die numerischen Untersuchungen zur Ausbildung von Pseudo-Stoßsystemen beinhalten einerseits eine ausführliche Validierung gängiger RANS-Turbulenzmodelle anhand experimentell ermittelter Druckverläufe und Schlierenbilder. Andererseits wird durch Simulationen belegt, dass kleine Spalte zwischen Bauteilen im Bereich der Teststrecke des Windkanals einen signifikanten Einfluss auf den gemessenen Druckverlauf im Kanal aber auch auf die Struktur, das Symmetrieverhalten und die Oszillation des Pseudo-Stoßsystems haben. Weiterhin werden passive Maßnahmen zur Verkürzung des Pseudo-Stoßsystems vorgestellt.

Die Berechnung des Partikelwachstums erfolgt durch die gekoppelte Simulation der Strömung, der Präkursorcinetik und der Koagulation. Eine projektintern durchgeführte Parametervariation mit einem Plasmareaktor dient der Validierung eines bimodal-monodispersen Partikelmodells. Durch die Implementierung eines Nukleationsmodells wird der Einfluss ebendieser untersucht.

Das Partikelwachstum in der Pilotanlage wird mit einem bimodal-monodispersen, einem bimodal-polydispersen und einem sektionalen Partikelmodell berechnet. Es wird nachgewiesen, dass die Wandtemperatur einen signifikanten Einfluss auf die zu erwartende Partikelgröße hat. Ein Vergleich mit den experimentellen Daten weist vor allem für hohe Temperaturen eine sehr gute Übereinstimmung auf.

INHALTSVERZEICHNIS

1	EINLEITUNG	1
1.1	Motivation	1
1.2	Herstellung nanoskaliger Partikel	4
1.3	Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion	6
1.3.1	Schlüsselfunktionen	7
1.3.2	Teilprojekte	9
1.3.3	Schwerpunkte dieser Arbeit	10
2	PSEUDO-STOßSYSTEME	13
2.1	Übersicht	13
2.1.1	Begriffsklärung und Mechanismus	13
2.1.2	Stand der Forschung und Literaturübersicht	14
2.1.3	Pseudo-Stoßsysteme in technischen Anwendungen	18
2.2	Experimente am Ersatzsystem Köln	20
2.2.1	Aufbau des Experiments in Köln	20
2.2.2	Messergebnisse	23
2.2.3	Mögliche Fehlerquellen	30
2.2.4	Sekundärexperiment zur Untersuchung des Spalteinflusses	31
2.3	Simulation der spaltfreien Konfiguration	33
2.3.1	Numerisches Modell	33
2.3.2	Gitterstudie	34
2.3.3	Untersuchung der in CFX implementierten Turbulenzmodelle	39
2.3.4	Bewertung der Turbulenzmodelle	54
2.4	Simulation der spaltbehafteten Konfiguration	62
2.4.1	Abweichungen im Druck	63
2.4.2	Deformation des Stoßsystems	69
2.4.3	Einfluss des Spaltes auf die axiale Stoßoszillation	73
2.4.4	Einfluss auf das Symmetrieverhalten	80

2.5	Geometrieoptimierung	88
2.5.1	Absaugung und Konturausbuchtung	88
2.5.2	Verkürzte rechteckige Düse	90
2.5.3	Verkürzte rotationssymmetrische Düse	94
3	PARTIKELMODELLIERUNG	97
3.1	Übersicht	97
3.1.1	Partikelentstehung in der Gasphase	97
3.1.2	Literatur	100
3.2	Modellierung der Präkursorkinetik	103
3.2.1	Transport passiver Skalare in CFX	103
3.2.2	Modellierung des Zündverzugs	105
3.2.3	Präkursorzerfall und Wärmefreisetzung	106
3.3	Modellierung der Partikelentstehung in der Gasphase	109
3.3.1	Monomerbildung und homogene Keimbildung	109
3.3.2	Koagulation	111
3.3.3	Sintermechanismen	114
3.4	Modelle zur Berechnung der Partikelgröße	117
3.4.1	Bimodal-Monodisperses Modell	117
3.4.2	Bimodal-Monodisperses Modell unter Berücksichtigung der Nukleation	119
3.4.3	Bimodal-Polydisperses Modell	121
3.4.4	Sektionales Modell	123
3.5	Simulation des Partikelwachstums im Plasmareaktor	125
3.5.1	Aufbau des Plasmareaktors und experimentelle Ergebnisse	125
3.5.2	Berechnung des Partikelwachstums	128
3.5.3	Einfluss der Nukleation	133
3.5.4	Bewertung der Ergebnisse	136
3.6	Simulation des Partikelwachstums im GiP-Reaktor	138
3.6.1	Prozessbeschreibung	139
3.6.2	Rechnungs-Messungs-Vergleich	142
3.6.3	Bewertung der Ergebnisse	147
4	ZUSAMMENFASSUNG	149

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

1.1	Pilotanlage zur gasdynamisch induzierten Partikelproduktion	6
1.2	Schematische Darstellung der gasdynamisch induzierten Partikelproduktion	7
1.3	Temperaturprofil als Schlüsselfunktion des GiP-Prozesses	9
2.1	Prinzipbild eines Pseudo-Stoßsystems	13
2.2	Transition eines senkrechten Stoßes zu einem Pseudo-Stoßsystem	15
2.3	Einfluss der Grenzschichtdicke auf Pseudo-Stoßsysteme	15
2.4	Large Eddy Simulation (LES) eines Pseudo-Stoßsystems	17
2.5	Foto des Ersatzsystems Köln	21
2.6	CAD-Zeichnung und Angaben zur Geometrie des Ersatzsystems Köln	21
2.7	Modularer Aufbau der ersten Düse mit auswechselbaren Konturleisten	21
2.8	Experimenteller und analytischer dimensionsloser Druckverlauf I	24
2.9	Experimenteller und analytischer dimensionsloser Druckverlauf II	24
2.10	Experimenteller Druckverlauf bei festgehaltener Ruhetemperatur T_{01}	26
2.11	Experimenteller Druckverlauf bei festgehaltenem Ruhedruck p_{01}	27
2.12	Experimenteller Druckverlauf bei festgehaltener Ruhedichte ρ_{01}	28
2.13	Simulierter Druckverlauf bei festgehaltener Ruhedichte ρ_{01}	29
2.14	Modularer Aufbau der ersten Düse	31
2.15	Experimenteller Aufbau zur Untersuchung des Spalteinflusses	32
2.16	Verteilung der Blöcke über den Querschnitt	36
2.17	Dimensionsloser Wanddruckverlauf für fünf verschiedene Gitterauflösungen	37
2.18	Machzahlverteilung für fünf verschiedene Gitterauflösungen	38
2.19	Machzahlverteilung für verschiedene Wirbelviskositäts-Modelle	41
2.20	Dimensionsloser Druckverlauf für verschiedene Wirbelviskositäts-Modelle	42
2.21	Machzahlverteilung für verschiedene Reynolds-Spannungs-Modelle	44
2.22	Dimensionsloser Druckverlauf für verschiedene Reynolds-Spannungs-Modelle	45
2.23	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das Spalart-Allmaras Modell	46
2.24	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das k- ε -Modell	48
2.25	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das k- ω -Modell	48
2.26	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das BSL-Modell	49

2.27	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das SST-Modell	49
2.28	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das LRR-IP-RSM	51
2.29	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das LRR-QI-RSM	51
2.30	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das SSG-RSM	52
2.31	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das ω -RSM	53
2.32	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das BSL-RSM	53
2.33	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für das BSL-EARSM	54
2.34	Oberflächenströmung des Experiments von CARROLL und DUTTON [21]	55
2.35	Simulierte Oberflächenströmung	56
2.36	Schlierenbilder des Pseudo-Stoßsystems für die spaltfreie Konfiguration	57
2.37	Grenzschichtprofil für verschiedene Turbulenzmodelle	59
2.38	Grenzschichtprofil für die ω -basierten RSM	61
2.39	Dimensionsloser Druckverlauf für verschiedene Spaltweiten	63
2.40	Machzahlverteilung im ersten engsten Querschnitt A_1^*	64
2.41	Machzahlverteilung am Beginn des Pseudo-Stoßsystems	66
2.42	Spaltinduzierter schräger Verdichtungsstoß	67
2.43	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für die spaltfreie Konfiguration	68
2.44	3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für die spaltbehaftete Konfiguration	69
2.45	Schlierenbilder für verschiedene Spaltweiten	71
2.46	Schlierenbilder für 0.2 mm Spaltweite	73
2.47	Grundtypen der Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung	74
2.48	Spaltinduzierte Kelvin-Helmholtz-Instabilität	75
2.49	Druckoszillation im Kanal induziert durch die Kelvin-Helmholtz-Instabilität	77
2.50	Stoßoszillation im Kanal induziert durch die Kelvin-Helmholtz-Instabilität	77
2.51	Minimale und maximale Stoßposition im spaltfreien Experiment	78
2.52	Zeitserie eines asymmetrisch anliegenden Pseudo-Stoßsystems	80
2.53	Asymmetrisches und symmetrisches Pseudo-Stoßsystem im Experiment	81
2.54	Symmetrische und asymmetrische Lösungen für ein 2-D Pseudo-Stoßsystem	82
2.55	Selbstregulierende Stoßposition durch den Bypass-Massenstrom	82
2.56	Einfluss des Spaltes auf das Symmetrieverhalten	85
2.57	Aktive Stoßbeeinflussung durch Grenzschichtabsaugung	89
2.58	Passive Stoßbeeinflussung durch eine Konturausbuchtung	89
2.59	Verkürzten rechteckige Düse mit Konturausbuchtung	90
2.60	Oszillation der Stoßposition in der verkürzten rechteckige Düse	92
2.61	Hysterese der Stoßposition in der verkürzten rechteckige Düse	93
2.62	Verkürzte rotationssymmetrische Düse	95

3.1	Struktur des Präkursors TEOS	98
3.2	Prozess der Partikelbildung	99
3.3	TEM-Bilder verschiedener Partikelstrukturen	99
3.4	Schematische Darstellung verschiedener Partikelmodelle	101
3.5	Zündverzugszeit des Präkursors TEOS	105
3.6	Zerfallswege des Präkursors TEOS nach HERZLER <i>et al.</i> [58]	107
3.7	Vergleich der Koagulationskoeffizienten in Abhängigkeit von der Knudsenzahl	113
3.8	Sinterstadien	114
3.9	Unterteilung der Partikelklassen nach HOUNSLOW <i>et al.</i> [62]	123
3.10	Versuchsaufbau des mikrowellenbetriebenen Plasmareaktors	125
3.11	Plasmareaktor im Betrieb (ohne Heißwandreaktor)	126
3.12	Variation der maßgebenden Parameter für das Partikelwachstum	127
3.13	3-D CAD-Skizze des Plasmareaktors	128
3.14	Berechnete Temperaturverteilung im Plasmareaktor	129
3.15	Machzahl- und Temperaturverteilung im Bereich der Mikrowellenantenne	130
3.16	Einfluss der Mikrowellenleistung auf den Partikeldurchmesser	131
3.17	Vergleich des numerisch und experimentell ermittelten Partikeldurchmessers	132
3.18	Nukleationsrate im Plasmareaktor	133
3.19	Monomeranzahlkonzentration im Plasmareaktor	134
3.20	Partikelanzahlkonzentration im Plasmareaktor	135
3.21	Partikeldurchmesser im Plasmareaktor	135
3.22	Einfluss der Nukleation auf den berechneten Partikeldurchmesser	136
3.23	Schlüsselfunktion 1: Stationäre stoßinduzierte Verbrennung	139
3.24	Schlüsselfunktion 2: Homogene thermodynamische Zustände im Reaktor	140
3.25	Schlüsselfunktion 3: Gasdynamisches Quenchen	141
3.26	Rechnungs-Messungs-Vergleich der Gastemperatur und des Druckverlaufs	142
3.27	Validierung des bimodal-monodispersen Partikelmodells	143
3.28	Durchmesser und Standardabweichung der Partikel im GiP-Reaktor	144
3.29	Validierung des bimodal-polydispersen Partikelmodells	145
3.30	Vergleich der drei Partikelmodelle	146
3.31	Normierte Partikelanzahl des sektionalen Modells und des Experiments	147

TABELLENVERZEICHNIS

1.1	Beispiele für verbesserte und neue Eigenschaften durch den Einsatz von Nanomaterialien bei marktgängigen Produkten [118]	3
2.1	Geometrie des berechneten Gebiets	35
2.2	Zellanzahl in axialer Richtung für die Abschnitte D-G (siehe Tab. 2.1) und die Anzahl der Zellen in den Blöcken A, a, B und b (siehe Abb. 2.16)	36
3.1	Verschiedene Sintermechanismen und die jeweiligen Kinetikexponenten für Gleichung 3.44 nach KIRCHHOF [73]	116

NOMENKLATUR

Lateinische Großbuchstaben

A	$[m^2]$	Querschnittsfläche
C	$[\]$	Konstante
Cu	$[\]$	Cunninghamfaktor
D	$[m]$	Durchmesser
D_{Pg}	$[m]$	geometrisch gemittelter Durchmesser
D_{Φ}	$[m^2 \cdot s^{-1}]$	Kinematische Diffusivität
J	$[kg^{-1} \cdot s^{-1}]$	Nukleationsrate
K	$[\]$	Anzahl an Partikelklassen
M	$[kg \cdot mol^{-1}]$	Molare Masse
M_k	$[m^k \cdot kg^{-1}]$	k-tes Moment
N_A	$[mol^{-1}]$	Avogadrokonstante
N_D	$[kg^{-1} \cdot m^{-1}]$	durchmesserbasierte Anzahldichtefunktion
P	$[W]$	Leistung
Q_E	$[J \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}]$	Quellterm der Energieerhaltung
Q_{M_k}	$[m^{k-3} \cdot s^{-1}]$	Quellterm des k-ten Moments
Q_n	$[m^{-3} \cdot s^{-1}]$	Quellterm einer Anzahlkonzentration
Q_{V_P}	$[s^{-1}]$	Quellterm des Gesamtpartikelvolumens
Q_{Θ}	$[kg \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}]$	Quellterm des dimensionslosen Zündverzugs
R	$[m]$	Radius des Sinterhalses
R	$[J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}]$	spezifische Gaskonstante
S	$[\]$	Übersättigung
S	$[K]$	Sutherland-Konstante
T	$[K]$	Temperatur
U	$[m \cdot s^{-1}]$	Geschwindigkeitsvektor
V_P	$[m^3 \cdot kg^{-1}]$	Gesamtvolumen

Lateinische Kleinbuchstaben

a_0	[m]	Anfangsradius eines Partikels
a_f	[m]	Radius eines Partikels nach vollständiger Koaleszenz
c	[$m \cdot s^{-1}$]	Schallgeschwindigkeit
\bar{c}	[$m \cdot s^{-1}$]	mittlere Molekülgeschwindigkeit
c_p	[$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$]	isobare Wärmekapazität
c_v	[$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$]	isochore Wärmekapazität
d	[]	Konstante
f	[s^{-1}]	Frequenz
Δh	[$J \cdot kg^{-1}$]	Verbrennungsenthalpie
h	[m]	Höhe
k	[s^{-1}]	Abbrandrate
k	[$m^2 \cdot s^{-2}$]	turbulente kinetische Energie
k_B	[$J \cdot K^{-1}$]	Boltzmannkonstante
k_s	[m]	Sandrauigkeit
\dot{m}	[$kg \cdot s^{-1}$]	Massenstrom
n	[kg^{-1}]	Anzahlkonzentration
n_{Cl}	[]	Anzahl an Molekülen in einem Cluster
p	[$N \cdot m^{-2}$]	Druck
p_{sat, SiO_2}	[$N \cdot m^{-2}$]	Sättigungsdampfdruck von SiO_2
p_{SiO_2}	[$N \cdot m^{-2}$]	Partialdruck von SiO_2
s	[m^2]	Oberfläche eines Partikels
s_f	[m^2]	Oberfläche eines Partikels nach vollständiger Koaleszenz
t	[s]	Zeit
u, v, w	[$m \cdot s^{-1}$]	Geschwindigkeitskomponenten
u^+	[]	Dimensionslose Geschwindigkeit
u_τ	[$m \cdot s^{-1}$]	Wandreibungsgeschwindigkeit
v_p	[m^3]	Volumen eines Partikels
v_{SiO_2}	[m^3]	Volumen eines SiO_2 -Moleküls
x, y, z	[m]	Abstand vom Koordinatenursprung
y^+	[]	Dimensionsloser Wandabstand

Griechische Buchstaben

α	[$^\circ$]	vertikaler Öffnungswinkel der Düse
β	[$^\circ$]	horizontaler Öffnungswinkel der Düse
β	[$m^3 \cdot s^{-1}$]	Koagulationskoeffizient
γ	[]	Isentropenexponent
Δ	[]	Differenz
δ	[m]	Grenzschichtdicke
ε	[$m^2 \cdot s^{-3}$]	isotrope Dissipationsrate
η	[]	Wirkungsgrad
Θ	[]	dimensionsloser Zündverzug
κ	[]	von-Kármán-Konstante
λ	[m]	mittlere freie Weglänge
λ	[$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$]	Wärmeleitfähigkeit
μ	[$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$]	dynamische Viskosität
μ_t	[$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$]	turbulente Wirbelviskosität
ν	[$m^2 \cdot s^{-1}$]	kinematische Viskosität
ρ	[$kg \cdot m^{-3}$]	Dichte
σ	[$N \cdot m^{-1}$]	Oberflächenspannung
σ_g	[]	geometrische Standardabweichung
τ	[$N \cdot m^{-2}$]	Schubspannung
τ	[s]	charakteristische Zeitskala
τ	[]	numerischer Zeitschritt
ϕ	[kg^{-1}]	passiver Skalar
ω	[s^{-1}]	turbulente Wirbelfrequenz

Dimensionslose Kennzahlen

CFL	Courant-Friedrichs-Lewy-Zahl
Kn	Knudsenzahl
M	Machzahl
Re	Reynoldszahl
Sc	Schmidtzahl
St	Stokeszahl

Indizes und Hochgestellte Zeichen

0	Ruhegröße
1	erster engster Querschnitt
2	zweiter engster Querschnitt
*	Kritischer Wert bei Schallgeschwindigkeit
*	Kritisch durchströmter Querschnitt
*	Kritische Größe
∞	Zustand der ungestörten Strömung
\wedge	Nachstoß-Zustand
<i>Cl</i>	Cluster
<i>Cu</i>	Cunningham'sche Slip-Korrektur
<i>Da</i>	Interpolation nach Dahneke
<i>exit.</i>	Randbedingung am Auslass des Rechengebiets
<i>Exp.</i>	experimentell ermittelter Wert
<i>FM</i>	freie Molekularströmung
<i>Ges.</i>	Gesamtmassenstrom
<i>i</i>	Partikelklasse
<i>i, j</i>	Stoßpartner unterschiedlicher Größe
<i>Koag</i>	Koagulation
<i>Koal</i>	Koaleszenz
<i>max</i>	Maximalwert
<i>P</i>	Partikel
<i>ref</i>	Referenzwert
<i>Sim.</i>	simulierter Wert
<i>SiO₂</i>	Wert eines <i>SiO₂</i> -Moleküls
<i>tot</i>	totale Größe
<i>turb</i>	turbulente Größe
<i>vD</i>	van-Driest transformierte Größe
<i>W</i>	Wert an der Kanalwand

Abkürzungen

1-D	eindimensional
2-D	zweidimensional
3-D	dreidimensional
BDF	Backward Differentiation Formula
BSL	Baseline Turbulenz Modell
CAD	Computer-aided design (Rechnerunterstütztes Konstruieren)
CEM	Controlled Evaporation System
CFD	Computational Fluid Dynamics (Numerische Strömungsmechanik)
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
EARSM	Explizit Algebraisches Reynolds-Spannungs-Modell
FFT	fast Fourier transform (schnelle Fourier-Transformation)
GDE	General Dynamic Equation
GiP	Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion
LDV	Laser Doppler Velocimetry
LED	Licht emittierende Diode
LES	Large Eddy Simulation (Grobstruktursimulation)
LRR	Launder, Reece und Rodi Reynolds-Spannungs-Modell
PAK	DFG-Paketantrag
RANS	Reynolds-averaged Navier–Stokes equations (Reynolds-gemittelte Navier-Stokes-Gleichungen)
RSM	Reynolds-Spannungs-Modell
SC	Source Coefficient
SSG	Speziale, Sarkar und Gatski Reynolds-Spannungs-Modell
SST	Shear Stress Transport Turbulenz Modell
SWL	Stoßwellenlabor
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TEOS	Tetraethylorthosilicat
TP	Teilprojekt
TÜV	Technischer Überwachungsverein
URANS	Unsteady Reynolds-averaged Navier–Stokes equations (instationäre Reynolds-gemittelte Navier-Stokes-Gleichungen)

EINLEITUNG

1.1 Motivation

Im Jahre 1915 nannte WALTER OSTWALD [97] seine Abhandlung über Kolloide noch *Die Welt der vernachlässigten Dimensionen*. Erst RICHARD P. FEYNMAN'S berühmter Vortrag *There is Plenty of Room at the Bottom* [34] im Jahre 1959 auf einem Jahrestreffen der American Physical Society sorgte für eine regelrechte Aufbruchsstimmung in diesem Forschungsgebiet. Heute wird prognostiziert, dass die Nanotechnologie neben der Mikro-, Medizin-, Bio- und Informationstechnologie ein Innovationsmotor für die nächsten Jahrzehnte sein wird [19].

Die gesamte Nanotechnologie stützt sich dabei auf Materialien, deren charakteristische Struktur (Filmdicke, Partikelgröße, Porendurchmesser) in der Größenordnung von 1-100 Nanometern liegt. Der Bereich darüber ($>100\text{ nm}$) wird der Submikro- und Mikro-technologie zugeordnet; das untere Ende der Skala ist durch die Größe der verwendeten Atome oder Moleküle selbst begrenzt.

Das große wissenschaftliche als auch wirtschaftliche Interesse an Nanomaterialien gründet auf deren besonderen Eigenschaften. So zeichnet sich beispielsweise nanostrukturiertes Eisen durch eine besonders hohe Koerzivität, also einer sehr stabilen Magnetisierung aus, weshalb diese Materialien für Speichermedien von hoher Bedeutung sind [79]. Elektronische Eigenschaften wie der Leitwiderstand können durch die Zugabe von Nanopartikeln stark beeinflusst werden [88, 132]. Die optischen Eigenschaften finden beispielsweise in der Herstellung von Licht emittierenden Dioden (LED) ihre Anwendung, deren Farbspektrum durch die angelegte Spannung verändert werden kann [26]. Die Ursache für diese Eigenschaften liegt in erster Linie an der hohen spezifischen Oberfläche der Partikel. So befinden sich beispielsweise bei Partikeln in der Größenordnung von 10 nm etwa 20 % der gesamten Atome an deren Oberfläche, wohingegen Partikel mit 1 nm Durchmesser bereits 99 % Oberflächenatome aufweisen [63]. Ein Großteil der Gesamtenergie eines Partikels steckt somit in der Oberflächenenergie, die wiederum einen hohen Einfluss auf das Schmelzverhalten und damit verbundene Sintervorgänge hat [63, 73]. Die hohe Oberflächenspannung der Partikel führt zu gestauchten Gittern oder Gitterfehlern innerhalb des Partikels, wodurch diese einen hohen Härtegrad und eine hohe

Zugfestigkeit erhalten [94]. Andererseits werden Diffusionsprozesse erleichtert und somit Kriechprozesse beschleunigt [55]. Die katalytischen Eigenschaften beruhen ebenfalls auf der hohen spezifischen Oberfläche und dem damit verbundenen Ionisierungspotenzial. Rhodium- und Platinnanopartikel werden beispielsweise häufig in Katalysatoren für Pkws verwendet [77]. Titandioxid (TiO_2) hingegen eignet sich besonders zur Fotokatalyse [13] und wird in selbstreinigenden Fensterscheiben eingesetzt. Ebenso zur Katalyse, aber auch zur Adsorption und Desorption werden Zeolithe verwendet, die sich durch eine hohe innere Oberfläche auszeichnen. Eine ausführliche Zusammenfassung bekannter Eigenschaften ist in [143] nachzulesen.

Die Anwendungsmöglichkeiten sind vielfältig (siehe Tab. 1.1). Nanopartikel als Additiv ermöglichen beispielsweise die Herstellung von kratzfesten und Schmutz abweisenden Lacken und Gläsern. SiO_2 -Partikel sind in der Lebensmittelindustrie unter dem Zusatzstoff *E551* bekannt und beeinträchtigen beispielsweise die Fließfähigkeit von Ketchup. In der Bauindustrie wiederum wird damit schnell aushärtender Spezialbeton hergestellt. Silber- und Zinkoxid-Nanopartikel sind in der Kosmetikbranche bereits allgegenwärtig. Als reine Oberflächenbeschichtung kommen Nanomaterialien in Brennstoff- und Solarzellen oder effizienteren Lithium-Ionen-Batterien vor. Das Bundesamt für Sicherheit und Informationstechnologie schätzt das Marktvolumen der Nanotechnologie im Jahr 2010 auf 750 Milliarden Euro [19]. Besonders hervorzuheben ist der medizinische Bereich, in dem Nanopartikel als Trägerstoff für Medikamente eingesetzt werden. Der Umsatz mit so aufbereiteten Medikamenten lag 2007 bereits bei etwa 3.4 Milliarden Euro. Bis 2015 wird jedoch allein für diesen Sektor ein Marktvolumen von 150 Milliarden Euro vorhergesagt [24].

Angesichts des enorm hohen Innovations-, Anwendungs- und Marktpotenzials wurden „bereits im 6. EU-Forschungsrahmenprogramm für Forschung und technologische Entwicklungen im Bereich der Nanotechnologie 150 Millionen Euro pro Jahr zur Verfügung gestellt. Für das (..) 7. EU-Forschungsrahmenprogramm (2007-2013) plant die Kommission den Nanowissenschaften/-technologien für den gesamten Zeitraum ca. 4.8 Mrd. Euro bereitzustellen. Auch in Deutschland wird mit dem Programm ‘Neue Impulse für Innovation und Wachstum’ (2006-2009) die Wichtigkeit der Nanotechnologie weiter hervorgehoben“ [19].

Auch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) unterstützt zunehmend Forschungsvorhaben im Bereich der Nanotechnologie. Im Rahmen des Paketantrags PAK75: *Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion* (GiP) wurde zwischen 2006 und 2011 die Entwicklung eines gänzlich neuen Verfahrens zur Produktion von Nanopartikeln in der Gasphase ermöglicht. An diesem Projekt beteiligten sich Gruppen unterschiedlicher Fachrichtungen von fünf Universitäten, dem Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR)

und dem Industriepartner Evonic. Während der sechsjährigen Laufzeit wurden neben der Planung und erfolgreichen Umsetzung einer Pilotanlage auch grundlagenorientierte Forschungsarbeiten durchgeführt, die zu zahlreichen Publikationen und hohem Interesse seitens des Fachpublikums führten [95]. Der Fokus der vorliegenden Arbeit, die im Rahmen des Teilprojekts „TP2 - Numerische Auslegung und Simulation der Gesamtanlage“ entstanden ist, liegt auf der numerischen Untersuchung der Schlüsselkomponente „Pseudo-Stoßsystem“ sowie auf der Modellierung und Berechnung des Partikelwachstums in der Versuchsanlage.

Nanomaterial	Einsatz	Verbesserte oder neue Eigenschaft
Kolloidales Siliziumdioxid	Als Zuschlagstoff in Beton	Verbesserung der Festigkeit und des Fließ- und Abbindeverhaltens
Aerogele (Hochporöse Materialien)	Fensterglas	Verbessertes Wärmeisolvungsvermögen, gleichzeitig lichtdurchlässig
Ceroxid	Als Katalysator bzw. Dieselmzusatz für Verbrennungsmotoren	Verbesserung der Kraftstoffeffizienz durch eine vollständige katalytische Verbrennung
Kohlenstoffnanoröhren	Kunststofffass mit elektrisch leitender Außenschicht	Zum Transport von entflammabaren Gütern
Nanostrukturierte Antireflexschichten	Silizium-Solarzellen	Höhere Lichtausbeute
Nanoschichten	Beschichtung z. B. von Leiterplatten	Durch Antihafteffekt leichter zu reinigen
Nano-Tonmineral	In Polymerkompositen für Lebensmittel-Verpackungen (z. B. für Kunststoffflaschen)	Verringerung des Austritts von Kohlensäure und Verbesserung der Steifigkeit und Stärke des Materials
Titannitrid	PET-Getränkeflaschen	Verbesserung der industriellen Verarbeitbarkeit des Polymergemisches (Flaschen können schneller gegossen werden)

Tabelle 1.1: Beispiele für verbesserte und neue Eigenschaften durch den Einsatz von Nanomaterialien bei marktgängigen Produkten [118]

1.2 Herstellung nanoskaliger Partikel

Um die Vorteile der gasdynamisch induzierten Partikelproduktion gegenüber gängigen Herstellungsprozessen darzustellen, soll hier ein knapper Überblick über die aktuellen Technologien gegeben werden. Die zwei grundlegenden Ideen zur Herstellung von Nanopartikeln sind das **Top-Down-Verfahren** und das **Bottom-Up-Verfahren**.

Das **Top-Down-Verfahren** verfolgt den Ansatz, größere Materialien zu kleineren zu verarbeiten. Dies geschieht beispielsweise durch mechanisches Mahlen. Diese Methode ist jedoch energieaufwendig, kostenintensiv und führt meist zu einem Endprodukt mit breiter Partikelgrößenverteilung. Außerdem neigen die Partikel dazu, sich unter dem hohen Mahldruck zu größeren Agglomeraten zusammenzuschließen, weshalb bestenfalls aufwendige Nachbehandlungsprozesse notwendig sind. Die Vorteile des Top-Down-Verfahrens liegen vielmehr im Bereich der Nanotechnik. Hier werden durch chemisches Ätzen oder unter Einsatz von Elektronenstrahl- oder Ionenstrahlmethoden elektronische Schaltungen oder kleinste Bauteile durch die Manipulation von Oberflächen (Lithografie) oder ganzer Festkörper geschaffen.

Im Gegensatz dazu verfolgt das **Bottom-Up-Verfahren** den Ansatz, Partikel oder Strukturen direkt aus den einzelnen Atomen oder Molekülen durch chemische/physikalische Manipulation oder durch Selbstorganisation aufzubauen [143]. Dies geschieht entweder über einen physikalischen Prozess (z. B. Phasenumwandlung) oder durch eine chemische Reaktion [118]. Diese Verfahren sind in der Regel gut kontrollierbar und kommen vor allem in der Partikelherstellung zum Einsatz.

Das Bottom-Up-Verfahren kann sowohl in der Flüssigphase als auch in der Gasphase stattfinden. Zu den wichtigsten Vertretern der **Flüssigphasenprozesse** zählen die **Fällung** und der **Sol-Gel-Prozess**. Gängige Fällungsprodukte sind Aluminiumoxid (Al_2O_3), Zirkonoxid (ZrO_2) und Titandioxid (TiO_2). Zwar können mit diesen Prozessen (z. B. Bayer-Prozess) Partikel im Megatonnenmaßstab produziert werden, andererseits sind die Partikel in der Regel größer als 100 nm und damit streng gesehen keine Nanopartikel. Andere Prozesse (z. B. Stöber-Prozess, SiO_2) sind in der Lage, sphärische Partikel mit monodisperser Größenverteilung zu produzieren. Doch aufgrund mangelnder Scale-up-Möglichkeit und einer diskontinuierlichen Prozessführung sind diese Verfahren für die Partikelproduktion im industriellen Maßstab ungeeignet [89]. Ein weiterer Nachteil gegenüber den Gasphasenprozessen ist die aufwendige Nachbehandlung. So sind beispielsweise aufwendige Trennverfahren der festen Phase von der Flüssigphase notwendig und eine anschließende Reinigung und Trocknung des Produkts. Weiterhin sind eine teure Abwasserreinigung und der Einsatz oberflächenaktiver Substanzen erforderlich [143]. Ähnlich verhält es sich bei den Sol-Gel-Prozessen. Im Unterschied zu den Fällungsverfahren entstehen hier hochporöse Produkte wie beispielsweise Zeolithe.

Die **Gasphasenprozesse** stellen die gängigsten Verfahren zur Partikelproduktion dar. Allen Prozessen ist gemein, dass die aufwendigen Nachbehandlungsprozesse der Flüssigphasenprozesse entfallen. Hinsichtlich Produktqualität und Morphologie kann aber keine allgemeingültige Aussage getroffen werden und die Prozesse müssen individuell bewertet werden.

Die **Flammensynthese** basiert, wie der Name bereits impliziert, auf der chemischen Umsetzung eines Präkursors in einer Flamme. Die wichtigsten Parameter für die Partikelqualität sind die Flammenführung (Teilvormisch-, Vormisch- und Diffusionsflamme), die Verweilzeit, die Temperaturhistorie und die Präkursorkonzentration. Das Partikelwachstum ist abgeschlossen, wenn kein weiterer Präkursor zerfällt und Koagulations- und Sintervorgänge gequenchet wurden (siehe dazu Kapitel 3.1.1). Im industriellen Maßstab kommen meist turbulente Vormischflammen zum Einsatz, wodurch eine relativ enge, aber dennoch keine monodisperse, Partikelgrößenverteilung realisiert werden kann. Je niedriger die Flammentemperatur ist, desto kleiner werden die Primärpartikel bei gleichzeitig steigendem Agglomerationsgrad. Dies konnte bis jetzt nur an einem Laborreaktor durch gezieltes aerodynamisches Quenchen verhindert werden [144].

Bei **Heißwandreaktoren** wird die nötige thermische Energie passiv über die Wände eingebracht. Die Vorteile dieses Verfahrens gegenüber den Flammenreaktoren liegen in den klar definierten Strömungszuständen und den homogenen Reaktorbedingungen. Ebenso können Verweilzeit, Temperatur und Konzentration nahezu beliebig eingestellt werden. Nachteilig sind der hohe Energieaufwand und der hohe Ablagerungsgrad der Partikel an den Rohrwänden.

Bei der **Plasmasynthese** können aufgrund der hohen Temperaturen beinahe beliebige Stoffe verbrannt oder verdampft werden. Direkt nach der Plasmaflamme beginnt die Nukleation der (teils ionisierten) Atome oder Moleküle gefolgt von weiteren Wachstumsprozessen durch Koagulation und Agglomeration. Die Verfahren werden meist bei geringen Drücken und entsprechend geringen Präkursormassenströmen betrieben, weshalb die Produktionsrate gering ausfällt. Je nach Prozessführung werden breite bis monodisperse Partikelgrößenverteilungen realisiert.

Als Letztes seien **Inertgaskondensationsverfahren und Freistrahlsysteme** genannt. Hier wird reines Metall unter Anwesenheit eines inerten Trägergases verdampft und anschließend gezielt abgekühlt. Darauf folgen die homogene Keimbildung und das nachfolgende Partikelwachstum. In Freistrahlsystemen wird die Abkühlung nicht durch ein kaltes Quenchgas, sondern durch aerodynamisches Quenchen in einer Düse realisiert. Freistrahlsysteme sind in der Lage, monodispers verteilte Partikel in der Größenordnung einiger Nanometer zu realisieren [120]. Dazu wird jedoch bis ins Hochvakuum expandiert, weshalb ein Scale-up der Verfahren limitiert ist.

1.3 Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion

Ziel des von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) geförderten Projekts PAK75: *Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion* (GiP) ist es, ein grundlegend neues Verfahren zur Produktion von Nanopartikeln zu entwickeln. Der Prozess basiert auf dem Bottom-Up-Verfahren in der Gasphase, wodurch eine kostengünstige Produktion ohne aufwendige Nachbehandlung möglich ist. Als Präkursor kommt das technisch einfach zu handhabende Tetraethylorthosilicat ($C_8H_{20}O_4Si$), kurz TEOS, zum Einsatz. Der chemische Zerfallsmechanismus lautet:



Mit diesem neuen Verfahren soll es erstmals möglich sein, sphärische und nicht aggregierte, amorphe SiO_2 -Partikel in der Größenordnung von 5-50 nm mit schmaler Größenverteilung im industriellen Maßstab zu erzeugen. Bis heute ist dies nur im Labormaßstab möglich (siehe z. B. Stöber-Prozess, Kapitel 1.2). Die Planung und Auslegung einer Pilotanlage erfolgte in Zusammenarbeit mit vier weiteren Universitäten und dem Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) (siehe Kapitel 1.3.2). Der Bau der Pilotanlage (siehe Abb. 1.1) und die erfolgreiche Erprobung erfolgten in Zusammenarbeit mit dem Industriepartner Evonic.

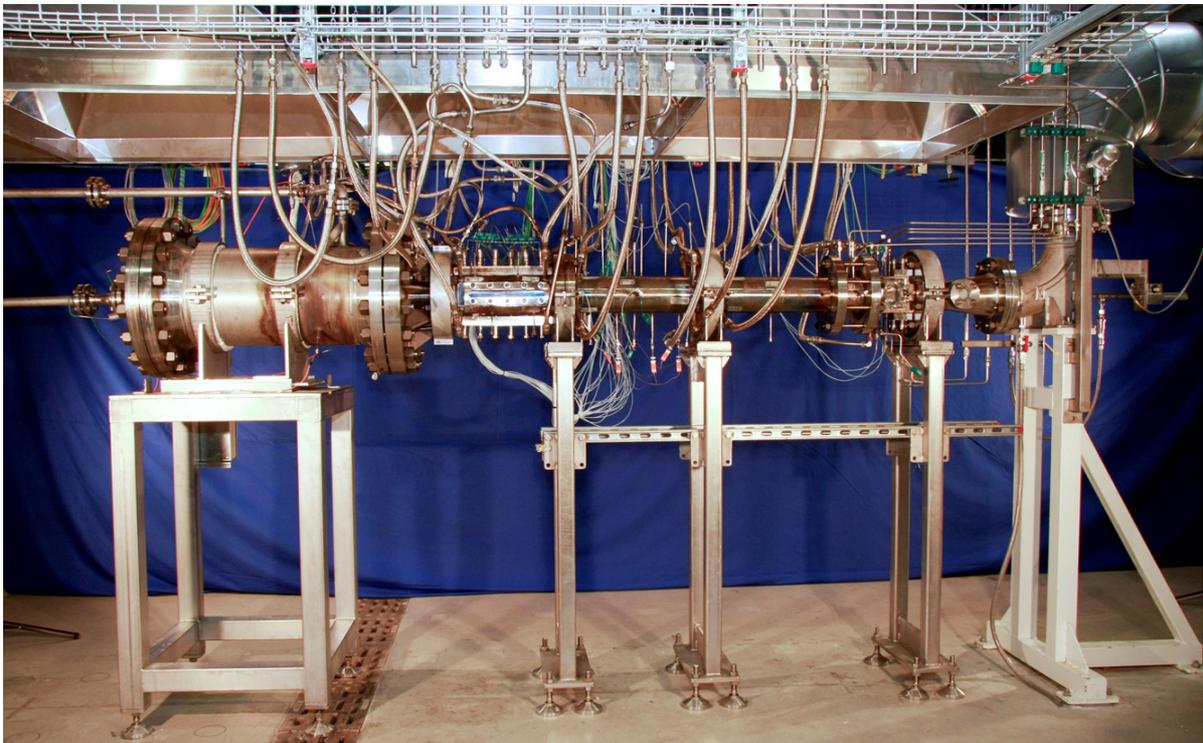


Abbildung 1.1: Pilotanlage zur gasdynamisch induzierten Partikelproduktion

1.3.1 Schlüsselfunktionen

Zur Produktion nicht aggregierter Partikel mit einer schmalen Größenverteilung in der Gasphase sind laut WEGNER *et al.* [143] hohe Aufheizraten, homogene Zustandsverteilung während des Wachstums sowie hohe Abkühlraten notwendig. Diese Anforderungen werden im GiP-Prozess über drei Schlüsselfunktionen realisiert:

1. Stationäre stoßinduzierte Verbrennung
2. Homogene thermodynamische Zustände im gesamten Reaktor
3. Gasdynamisches Quenchen in einer kritisch durchströmten Lavaldüse

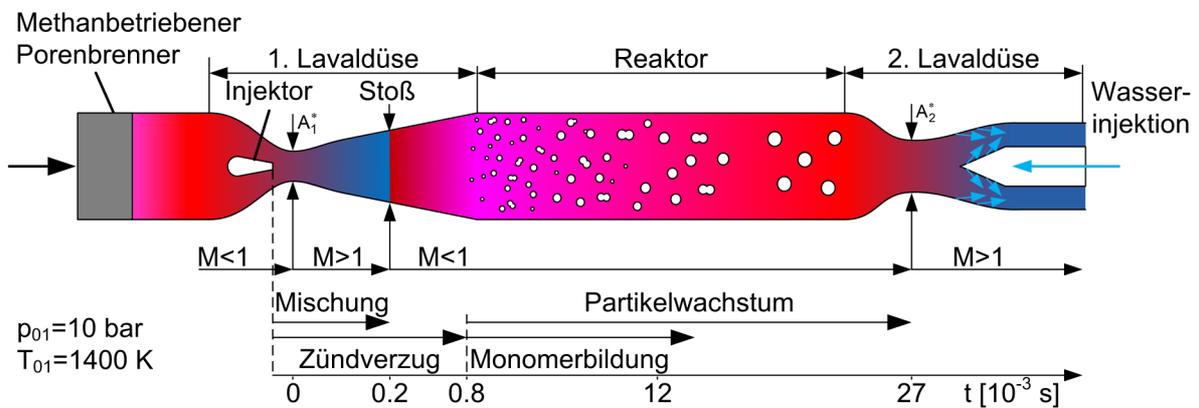


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der gasdynamisch induzierten Partikelproduktion

Das Konzept der stoßinduzierten Verbrennung wird üblicherweise in Stoßrohren angewandt, um einen definierten instantanen Temperatursprung zu erzeugen und somit die Kinetik chemischer Reaktionen untersuchen zu können. Um jedoch einen stationären Betrieb zu ermöglichen, muss das Trägergas samt Präkursor zuvor in den Überschall beschleunigt werden. Dies geschieht in einer ersten blockierten Lavaldüse (siehe Abb. 1.2). Die statische Temperatur vor dem Stoß muss unter der Zündtemperatur des Präkursors liegen, um Vorreaktionen zu unterdrücken. Die Vorstoßmachzahl wird so ausgelegt, dass der sprunghafte Anstieg der statischen Temperatur des Gasgemisches über die Zündtemperatur des Präkursors reicht und so die Zündung induziert. Hier gilt: Je heißer die Nachstoßtemperatur ist, desto schneller und homogener erfolgt der Abbrand des Präkursors und desto höher ist die Partikelqualität. Eine besondere Herausforderung der stationären stoßinduzierten Verbrennung stellt die sichere Einspeisung des Präkursors in das Trägergas dar. Optimal wäre eine Einmischung bei einer niedrigen statischen Temperatur, also einer hohen Machzahl. Dies ist jedoch aus geometrischen Gründen an der umgesetzten Versuchsanlage nicht möglich, da die Abmessungen der Gesamtanlage

zu klein sind. Stattdessen erfolgt die Einspeisung des kalten Präkursors kurz vor dem engsten Querschnitt bei $M \approx 0.8$. Die Mischung mit dem Trägergas erfolgt dann im Überschallteil der ersten Lavaldüse.

Über den Verdichtungsstoß steigt die statische Temperatur über die Zündtemperatur des Präkursors. Nach der Zündverzugszeit beginnt der exotherme Zerfall zu SiO_2 , H_2O und CO_2 . Aufgrund der hohen Übersättigung ($S = \mathcal{O}(10^3 \dots 10^6)$, siehe Gleichung 3.23) des Siliziumdioxids findet keine klassische Nukleation statt. Jedes SiO_2 -Molekül stellt einen wachstumsfähigen Keim dar. Da für diesen Prozess keine Flamme notwendig ist, in der lokal heiße und kalte Zonen auftreten, findet die anschließende Partikelbildung durch Koagulation und Oberflächenwachstum bei thermodynamisch homogenen Bedingungen statt (siehe Kapitel 3.6). Durch die Länge des Reaktors können die Verweilzeit und folglich auch die zu erwartende Partikelgröße eingestellt werden. Ebenso kann über die Reaktorlänge und die Reaktortemperatur der Agglomerationsgrad der Partikel eingestellt werden. In der zweiten Lavaldüse wird durch die Rückbeschleunigung der partikelbeladenen Strömung in den Überschall die statische Temperatur schlagartig unter die Sintertemperatur gesenkt, wodurch das Partikelwachstum instantan abgebrochen wird. Die Kühlrate durch die gasdynamische Expansion liegt in der Größenordnung von $\frac{\Delta T}{\Delta t} = -\mathcal{O}(10^5 \dots 10^7) \frac{K}{s}$. Danach wird im Überschallteil der zweiten Düse Wasser eingespeist. Durch die Verdampfung wird die Totaltemperatur der Strömung soweit abgesenkt, dass im Anschluss eine Rekompensation in den Unterschall ohne erneutes Partikelwachstum möglich ist.

In Abb. 1.3 ist das Ergebnis einer CFD-Simulation des GiP-Reaktors dargestellt. Der Konturplot gibt die lokale Machzahl auf der Symmetrieebene des Reaktors wieder. Das Trägergas tritt mit einer Ruhetemperatur von $T_0 = 1500 \text{ K}$ und einem Ruhedruck von $p_0 = 6.5 \text{ bar}$ in die erste Lavaldüse ein. Kurz vor dem engsten Querschnitt A_1^* wird der Präkursor über einen Injektor in die Strömung eingebracht. Im ersten engsten Querschnitt wird Schallgeschwindigkeit erreicht und anschließend bis zu einer Vorstoßmachzahl von $M = 1.53$ expandiert. Nach dem Stoß wird die Strömung aufgrund der Divergenz der ersten Düse weiter verzögert. Am Reaktorende wird die Strömung über die zweite Lavaldüse wieder in den Überschall expandiert. Die Wassereinspeisung in der Quenche wurde in der Simulation nicht berücksichtigt.

Das darunterliegende Diagramm zeigt den Verlauf der statischen Temperatur entlang der Achse (rot). Der sprunghafte Anstieg über den Stoß ist deutlich zu erkennen. Anschließend nimmt die Temperatur aufgrund der weiteren Verzögerung der Strömung als auch durch die Verbrennung des Präkursors weiter zu und erreicht ein Maximum von $T = 1320 \text{ K}$. Im weiteren Verlauf nimmt die Temperatur durch Wärmeverluste über die Reaktorwände leicht ab, bis die Strömung in die zweite Lavaldüse eintritt.

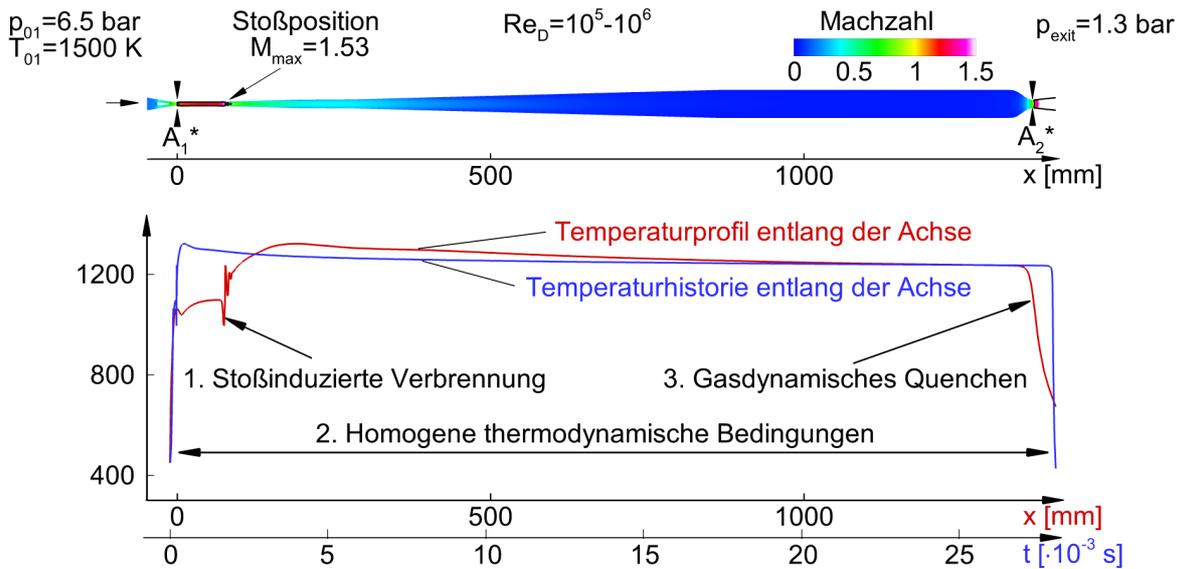


Abbildung 1.3: Temperaturprofil als Schlüsselfunktion des GiP-Prozesses

Oben: Machzahlverlauf auf der Symmetrieebene der aktuellen Anlage

Unten: Temperaturprofil (rot) und Temperaturhistorie (blau) entlang der Achse

Die Effizienz der drei Schlüsselfunktionen wird besonders deutlich, wenn man die Temperaturhistorie (blau dargestellt) im Reaktor betrachtet. Diese gibt den zeitlichen Verlauf der Temperatur entlang einer Stromlinie wieder. Die Verweilzeit im Überschallteil der ersten Lavaldüse fällt aufgrund der hohen Geschwindigkeit der Strömung kaum ins Gewicht und der Präkursor erfährt kurz nach der Einspeisung einen nahezu instantanen Temperatursprung. Ebenso verhält es sich bei der zweiten Lavaldüse, sodass sich für den Präkursor ein kastenförmiges Temperaturprofil einstellt. Damit sind die wesentlichen Voraussetzungen zur Produktion nicht aggregierter Partikel mit einer schmalen Größenverteilung in der Gasphase erfüllt.

1.3.2 Teilprojekte

Die Auslegung, Planung und Umsetzung der gasdynamisch induzierten Partikelproduktion sowie die Untersuchung einzelner Detailphänomene erfolgte in sechs Teilprojekten mit folgenden Themenschwerpunkten:

- **TP1** - Experimentelle Auslegung und Betreuung der Gesamtanlage:
 - Stoßwellenlabor (RWTH Aachen),
 - Projektleitung Prof. Dr.-Ing. H. Olivier

- Institut für Aerodynamik und Strömungstechnik (DLR Köln),
Projektleitung Dr.-Ing. A. Gülhan
- **TP2** - Numerische Auslegung und Simulation der Gesamtanlage:
 - Fachgebiet für Gasdynamik (TU München),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. G. H. Schnerr
 - Lehrstuhl für Aerodynamik und Strömungsmechanik (TU München),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. N. A. Adams
- **TP3** - Bestimmung der Zündverzugszeit der Präkursoren und Partikelbildung:
 - Institut für Verbrennung und Gasdynamik (Universität Duisburg-Essen),
Projektleitung Prof. Dr. rer. nat. C. Schultz und Dr. rer. nat. H. Wigger
- **TP4** - Untersuchung der Präkursoreinspeisung und Mischung:
 - Institut für Thermodynamik der Luft- und Raumfahrt (Universität Stuttgart),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. B. Weigand
 - Institut für Verbrennung und Gasdynamik (Universität Duisburg-Essen),
Projektleitung Prof. Dr. rer. nat. C. Schultz und Dr. rer. nat. H. Wiggers
 - Aerodynamisches Institut (RWTH Aachen),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. W. Schröder
- **TP5** - Entwicklung der Quenchtechnik:
 - Institut für Technische Thermodynamik und Kältetechnik (KIT),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. K. Schaber
- **TP6** - Partikeldiagnostik:
 - Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik (KIT),
Projektleitung Prof. Dr.-Ing. H. Nirschl

1.3.3 Schwerpunkte dieser Arbeit

In der ersten Projektphase wurde im Rahmen des TP2 die Strömungs- und Prozessführung zur gasdynamisch induzierten Partikelproduktion simuliert und festgelegt [5]. Darin enthalten ist die analytische Auslegung der Anlage, die Überprüfung und Weiterentwicklung mittels 2-D und 3-D CFD-Simulationen, die Validierung der CFD-Simulationen anhand projektinterner als auch externer Experimente und die Kopplung zweier Partikelmodelle mit dem verwendeten Strömungslöser.

In der zweiten Projektphase lag ein Fokus der in TP2 durchgeführten Simulationen einerseits auf der numerischen Validierung und Weiterentwicklung einzelner Anlagenkomponenten. Andererseits sollte durch Detailuntersuchungen ein tiefer greifendes Verständnis für die Schlüsselfunktionen „stoßinduzierte Verbrennung“ und „homogenes Partikelwachstum“ gewonnen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit erfolgten daher unterschiedlichste Untersuchungen in Kooperation mit anderen Teilprojekten. Diese seien hier kurz zusammengefasst:

- In Zusammenarbeit mit dem TP1-Aachen wurden verschiedene Düsenkonfigurationen untersucht und weiterentwickelt. Die Zielsetzung hierbei lag auf der passiven Beeinflussung des Pseudo-Stoßsystems hinsichtlich einer optimierten und homogeneren Aufheizrate durch eine Reduktion der Länge des Pseudo-Stoßsystems sowie einer Reduktion der axialen Stoßoszillation. Ausgewählte Ergebnisse der Untersuchungen sind in Kapitel 2.5 dargestellt.
- In Kooperation mit dem TP1-Köln erfolgte eine Untersuchung der Einflussfaktoren wie Düsenkontur, Vorstoßmachzahl und Reynoldszahl auf Länge und Form des Pseudo-Stoßsystems. Im Mittelpunkt der Zusammenarbeit stand die Validierung der CFD-Simulationen und der Klärung auftretender Abweichungen zwischen experimentellen und numerischen Ergebnissen. Teilaspekte dieser Kooperation wurden auf internationalen Konferenzen gezeigt [39, 40, 42, 46, 47, 111]. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse ist in Kapitel 2 dargestellt.
- Das TP3 untersuchte den Einfluss verschiedener Prozessparameter auf das Partikelwachstum in einem Plasmareaktor. Die experimentellen Ergebnisse konnten zur Validierung der Partikelmodelle herangezogen und teils sehr gut reproduziert werden. Weiterhin konnte durch die numerische Simulation des Plasmareaktors ein tieferes Verständnis der vorherrschenden Strömungszustände und des ablaufenden Partikelwachstums gewonnen werden. Ein Rechnungs-Messungs-Vergleich ist in Kapitel 3.5 und in [6, 7, 44, 45, 48] enthalten.
- Schwerpunkt des TP4 ist die Untersuchung der Präkursorinspeisung und Mischung. Experimentell als auch numerisch wurde der Einfluss der Injektorgeometrie auf das Mischungsverhalten im Überschall untersucht. Von TP2 wurden zusätzliche Simulationen der ersten Düse inklusive aller Bauteile und Kühlkanäle durchgeführt, um die thermodynamischen Zustände des Präkursors am Injektoreinlass zu klären. Weiterhin wurden alternative Einmischkonzepte für eine rotationssymmetrische erste Düse untersucht.

- Die Entwicklung der Quenchtechnik von TP5 wurde hinsichtlich der gasdynamischen Auslegung unterstützt. Hierzu wurde seitens des TP2 eine Düsenkontur entwickelt, die durch den Austausch des engsten Querschnitts bei gleichzeitiger Anpassung der Lanzenposition einen Machzahlähnlichen Strömungsverlauf für variable Massenströme garantiert. Zusätzlich erfolgte von TP2 die Entwicklung eines wasserfreien Quenchsystems, welches die Totaltemperatur im Überschallteil der Düse rein durch Wandkühlung unter die Sintertemperatur absenkt.
- Für TP6 (Partikeldiagnostik) wurden Simulationen zur Sondeninnenströmung durchgeführt. Dadurch konnte numerisch belegt werden, dass die Kühlrate in der Sonde von gleicher Größenordnung ist wie durch das aerodynamische Quenchen in der zweiten Düse. Eine Änderung der Partikelgröße und Morphologie innerhalb der Sonde ist daher unwahrscheinlich. Weiterhin wurden Simulationen zur Sondenumströmung und eine Geometrieoptimierung der Sonde durchgeführt. Dadurch konnte numerisch sichergestellt werden, dass die abgesaugten Partikel der Kernströmung, und nicht dem Rezirkulationsgebiet der Sonde selbst, entstammen. Ausgewählte Ergebnisse sind in [50] enthalten.

Im Fokus der vorliegenden Arbeit stehen die durchgeführten Detailuntersuchungen zu den Schlüsselfunktionen „stoßinduzierte Verbrennung“ und „homogenes Partikelwachstum“.

In Kapitel 2 werden die Arbeiten zum Thema „Pseudo-Stoßsystem“ vorgestellt. Vorweg werden die treibenden Mechanismen erklärt, gefolgt von einem kurzen Überblick über den Stand der Forschung. In Kapitel 2.2 erfolgt eine detaillierte Beschreibung der am DLR Köln durchgeführten Experimente. Kapitel 2.3 enthält eine Beschreibung des numerischen Set-ups sowie eine detaillierte Gitter- und Turbulenzmodellstudie. Die Klärung reproduzierbarer Abweichungen zwischen Experiment und Simulation erfolgt in Kapitel 2.4. Abschließend werden ausgewählte Ergebnisse der Geometrieoptimierung vorgestellt (Kapitel 2.5).

Kapitel 3 beinhaltet die numerischen Untersuchungen zum Partikelwachstum. Auch hier werden vorab die physikalischen Prozesse und Modellierungsansätze erklärt und eine Zusammenfassung entsprechender Veröffentlichungen aufgeführt (Kapitel 3.1). Anschließend wird die gewählte Modellierung der Präkursorkinetik und des Partikelwachstums erläutert (Kapitel 3.2 bis 3.4). Abschließend werden die implementierten Modelle anhand experimenteller Ergebnisse des von TP3 betriebenen Plasmareaktors und des im Rahmen des Projekts entwickelten GiP-Reaktors validiert (Kapitel 3.5 und 3.6).

stattfindet. Die Verschneidungen der Kompressionswellen führen letztendlich zur Bildung eines zweiten Stoßes. Dieser Vorgang wiederholt sich mehrmals, man spricht von einem **Shocktrain**. Nach dem letzten Stoß findet an den äußeren Rändern des vorangegangenen Shocktrains nochmals eine Beschleunigung in den Überschall statt. Die Kernströmung bleibt aufgrund der höheren Verluste über die vorangegangenen senkrechten Stöße im Unterschall. Die Verzögerung der verbleibenden Überschallgebiete geschieht stoßfrei durch einen Impulsaustausch in der turbulenten Scherschicht. Da die Rekompensation stoßfrei geschieht, kann die Existenz der Überschallgebiete nur anhand des statischen Drucks oder über numerische Simulationen gezeigt werden. MATSUO *et al.* [91] nennen diesen Bereich der stoßfreien Druckrückgewinnung **Mischungszone**, da sowohl Über- als auch Unterschallgebiete auftreten.

Der gesamte Bereich wird von MATSUO *et al.* [91] als „pseudo-shock“ bezeichnet. In der vorliegenden Arbeit wird der Term **Pseudo-Stoßsystem** (engl. *pseudo-shock system*) verwendet, da die Bezeichnung „pseudo-shock“ ebenso wie der Term „pseudo-shock wave“ oder „shock system“ auch oftmals nur für die Bezeichnung der Stoßkonfiguration oder gar nur eines Teils der Stoßkonfiguration verwendet wird.

2.1.2 Stand der Forschung und Literaturübersicht

Die ersten Untersuchungen von Pseudo-Stoßsystemen gehen auf CROCCO [28] zurück, der erstmals einen Zusammenhang zwischen der Existenz von Pseudo-Stoßsystemen und der vorherrschenden Grenzschichtdicke δ erkannte. Ausführliche Untersuchungen zur Transition von einem einfachen vertikalen Stoß hin zur Ausbildung eines Pseudo-Stoßsystems zeigen vornehmlich eine deutliche Abhängigkeit von der Vorstoßmachzahl und dem damit einhergehenden Druckverhältnis über den Stoß. MATSUO *et al.* [91] zeigen in einer umfangreichen Zusammenfassung über Pseudo-Stoßsysteme, dass sich solche ab $M \approx 1.5$ bilden (siehe Abb. 2.2). In einer früheren Arbeit von TAMAKI *et al.* [133, 134] wird das Erscheinungsbild in drei Kategorien unterteilt. Demnach tritt für Vorstoßmachzahlen $M < 1.4$ eine Abfolge senkrechter Stöße auf (*normal shock train*). Im Bereich $1.4 < M < 1.8$ bildet sich ein sog. Lambda-Fuß am ersten Stoß aus (*lamda-foot shock train*). Auf der Achse kommt es zur Ausbildung einer Machreflexion. Diese wird mit steigender Machzahl kleiner und verschwindet ab einer Vorstoßmachzahl von $M > 1.8$ (*x-type shock train*). TAMAKI *et al.* [133] unterschlagen in ihrer Arbeit jedoch den Einfluss der Grenzschichtdicke δ . So konnte beispielsweise für Konfigurationen mit einem sehr kleinen Verhältnis von Grenzschichtdicke δ zu Kanalhöhe h auch für $M = 1.8$ ein senkrechter Stoß mit kleinen Lambda-Füßen erzeugt werden [130].

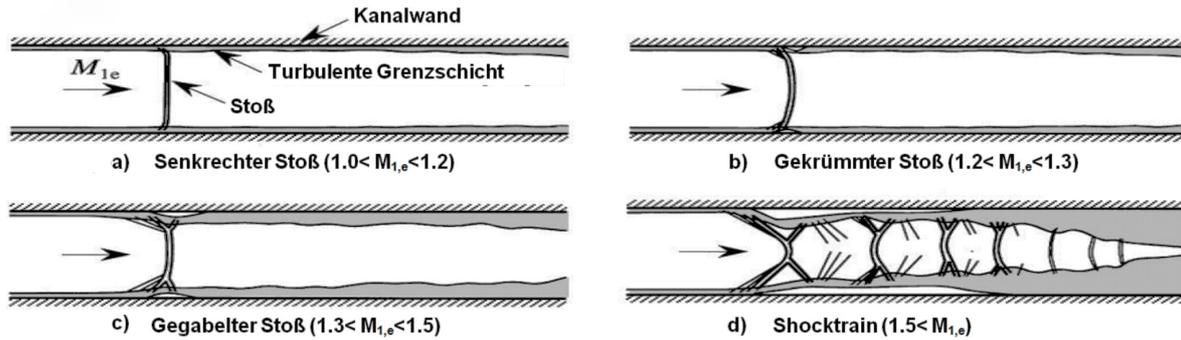


Abbildung 2.2: Transition eines senkrechten Stoßes zu einem Pseudo-Stoßsystem in Abhängigkeit von der Machzahl [91]

Auch CARROLL und DUTTON [21, 22] zeigen, dass für eine Vorstoßmachzahl $M = 1.6$ sowohl Form und Länge des Shocktrains als auch die Anzahl der auftretenden Stöße stark von dem Verhältnis der Grenzschichtdicke zur Kanalhöhe δ/h abhängen (siehe Abb. 2.3). Sie veröffentlichen ebenso ausführliche Schlierenbilder in Kombination mit Ölanstrichbildern und Untersuchungen mit Laser Doppler Velocimetry (LDV). Somit ermöglichen sie erstmals Rückschlüsse auf die 3-D Struktur des Stoßsystems. Bei einer Vorstoßmachzahl von $M = 2.45$ stellen sie in ihren Experimenten eine deutliche Asymmetrie des auftretenden Stoßsystems fest. Ähnliche Ergebnisse wurden auch von

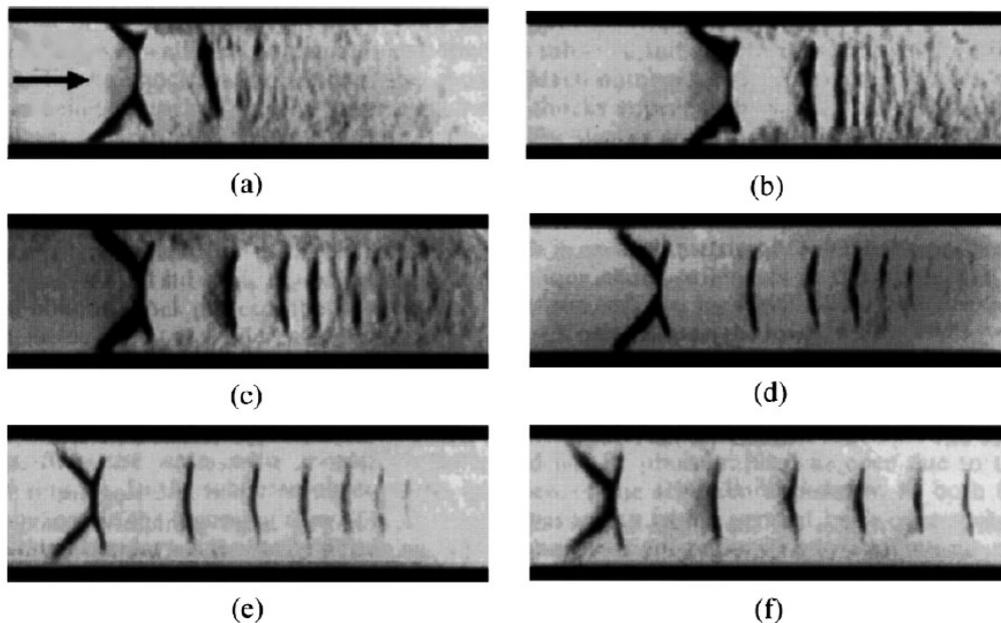


Abbildung 2.3: Experimentelle Schlierenbilder von Pseudo-Stoßsystemen mit einer Vorstoßmachzahl von $M=1.6$ aus [91] von [21]: (a) $\delta/h=0.08$, (b) $\delta/h=0.14$, (c) $\delta/h=0.27$, (d) $\delta/h=0.32$, (e) $\delta/h=0.40$, (f) $\delta/h=0.49$.

SUN *et al.* [131] bei Vorstoßmachzahlen von $M = 2$ und $M = 4$ gezeigt. CARROLL und DUTTON [21, 22] berichten des Weiteren von einer axialen Oszillation der Stoßposition und einer niederfrequenten, teils stochastischen transversalen Oszillation des Shocktrains. Beides tritt verstärkt bei höheren Machzahlen auf. Dies wurde ebenfalls von SUN *et al.* [131], PAPAMOSCHOU und ZILL [103] und JOHNSON und PAPAMOSCHOU [68] beobachtet. BOURGOING und REIJASSE [17, 18] hingegen kommen zu gegenteiligem Ergebnis. Aus der Arbeit geht jedoch hervor, dass der Öffnungswinkel der von [17, 18] verwendeten Lavaldüse stark variiert, weshalb die Vorstoßmachzahl nicht den alleinigen veränderten Parameter darstellt. Dennoch konnte eine zunehmende Grenzschichtdicke als anfachender Mechanismus für das Auftreten von Asymmetrie identifiziert werden.

In neuesten Untersuchungen von GRZONA und OLIVIER [52, 53] wurde die Stoßoszillation u. a. anhand zeitlich hochaufgelöster Schlierenbilder untersucht. Das Frequenzspektrum zeigt ein breites Maximum zw. $f = 30 - 300 \text{ Hz}$ und ein starkes Abklingverhalten der höheren Frequenzen bis max. 1000 Hz . GRZONA und OLIVIER [52, 53] führen dieses niedere Spektrum auf die Eigenresonanz des Windkanals zurück. Weitere Untersuchungen der turbulenten Geschwindigkeitsfluktuationen durch Hitzdrahtanemometrie zeigen, dass erst stromab des ersten Stoßes ein deutliches Frequenzspektrum zw. $10 - 45 \text{ kHz}$ auftritt, welches bis zur Mischungszone deutlich angefacht und anschließend langsam dissipiert wird. Die Untersuchungen legen nahe, dass dieses Frequenzband durch die Stoß-Grenzschicht-Interaktion angeregt wird.

Eine aktive Maßnahme zur Stoßstabilisierung wurde von WEISS und OLIVIER [145, 146] vorgestellt. Mit zunehmender Grenzschichtabsaugung konnte das Pseudo-Stoßsystem stabilisiert, die Länge reduziert und letztendlich ein senkrechter Stoß erzeugt werden.

Neben einer Vielzahl von Experimenten werden zunehmend auch numerische Methoden eingesetzt, um die Mechanismen besser zu verstehen. SUN *et al.* [131] verglichen beispielsweise ihre oben genannten Experimente mit CFD-Simulationen und konnten mit einem RANS-basierten (Reynolds Averaged Navier Stokes) 0-Gleichungsmodell nach BALDWIN und LOMAX [11] teils gute Übereinstimmung feststellen. Das asymmetrische Verhalten bei $M = 4$ konnte allerdings nicht reproduziert werden. Dies gelang jedoch XIAO *et al.* [151] für die von PAPAMOSCHOU und ZILL [103] vorgestellten Experimente sowie GAWEHN *et al.* [41] für eigene Experimente. Beide verwendeten das $k-\omega$ -Modell nach WILCOX [147]. Eine umfangreiche Studie ausgewählter RANS-Modelle zur Simulation von Pseudo-Stoßsystemen wurde von GIGLMAIER *et al.* [46] durchgeführt.

Numerische Untersuchungen zur aktiven und passiven Stoßbeeinflussung durch Grenzschichtabsaugung bzw. eine gezielte Konturmodifikation wurden von AL-HASAN und SCHNERR [8] vorgestellt. Der experimentelle Nachweis eines verkürzten Stoßsystems durch die Konturmodifikation wurde in [5] gezeigt.

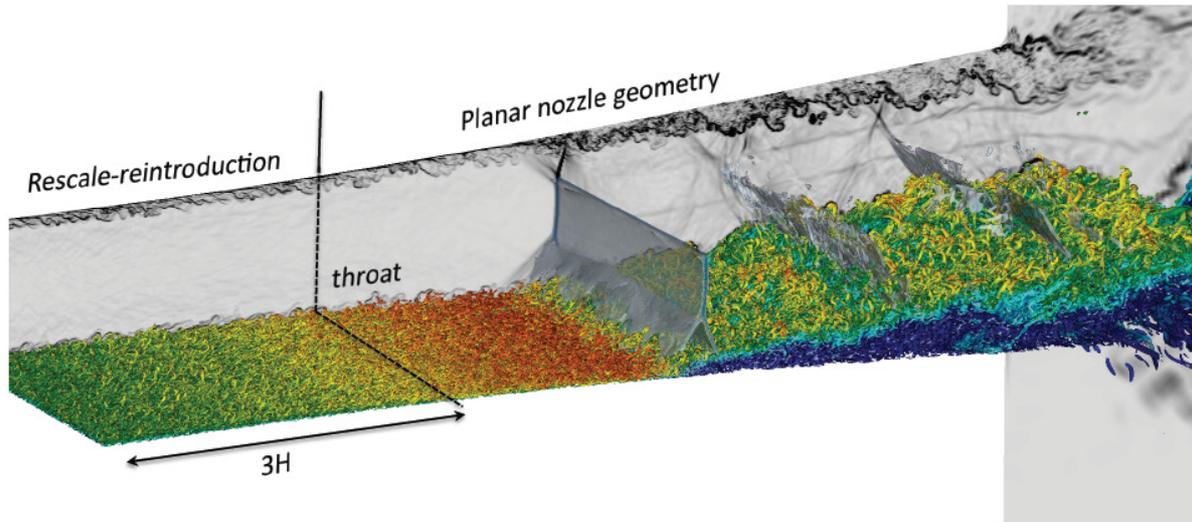


Abbildung 2.4: Large Eddy Simulation (LES) eines Pseudo-Stoßsystems von OLSON und LELE [96]

OLSON und LELE [96] zeigen eine Large Eddy Simulation (LES) des von JOHNSON und PAPAMOSCHOU [68] durchgeführten Experiments (siehe Abb. 2.4). Ein direkter Vergleich mit dem Experiment ist jedoch nicht möglich, da aufgrund des hohen Rechenaufwands einerseits die Seitenwände unberücksichtigt blieben und andererseits die Grenzschicht gegenüber dem Experiment vergrößert und die Reynoldszahl reduziert wurde. Zukünftig wollen die Autoren Wandmodelle verwenden, um den hohen Rechenaufwand zu umgehen. Die Zweckmäßigkeit darf jedoch infrage gestellt werden, da Wandmodelle in der Regel schlechte Ergebnisse für Strömungen mit hohen Druckgradienten liefern [60]. Völlig unberücksichtigt werden diese Probleme von WATANABE *et al.* [142], die stattdessen ihre LES mit einer stark unzureichenden Wandauflösung durchgeführt haben. Die Stoßposition, die Länge des Stoßsystems und die Druckfluktuationen weisen noch deutliche Unterschiede zum Experiment auf.

Die Haupteinflussparameter auf Pseudo-Stoßsysteme lassen sich (ähnlich wie bei der gängigen Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung) wie folgt zusammenfassen:

- Vorstoßmachzahl
- Verhältnis der Grenzschichtdicke zur Kanalhöhe δ/h
- Kanalgeometrie
- Charakteristik der Grenzschicht (laminar/turbulent, Formfaktor)
- Ein- und Auslassbedingungen

Die Folgen der Rekompansion durch ein Pseudo-Stoßsystem gegenüber einem idealen senkrechten Verdichtungsstoß sind:

- inhomogene Strömungszustände (lokale Über- und Unterschallgebiete)
- ein reduzierter Temperatur- und Druckgradient
- eine hohe Turbulenzproduktion in und nach dem Pseudo-Stoßsystem durch auftretende Scherschichten
- ein erhöhter Totaldruckverlust und eine höhere Entropiezunahme bei festgehaltener Vorstoßmachzahl durch die Ausbildung mehrerer Stöße
- eine geringere Vorstoßmachzahl bei festgehaltenem Gegendruck
- eine zunehmende axiale Oszillation der Stoßposition
- eine laterale Oszillation des nachfolgenden Shocktrains

2.1.3 Pseudo-Stoßsysteme in technischen Anwendungen

Neben der reinen Grundlagenforschung hinsichtlich der Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung treten Pseudo-Stoßsysteme auch in technischen Anwendungen auf, deren Beherrschung teilweise von sicherheitsrelevantem Charakter ist. Vor allem hinsichtlich des wieder zunehmenden Interesses an Überschallflugzeugen ist das Thema verstärkt in den Fokus aktueller Untersuchungen gerückt. Aber auch in der Verfahrenstechnik finden sich verschiedene Anwendungen. Einige Beispiele seien hier kurz aufgelistet:

Triebwerkseinlauf

Zu den wichtigsten technischen Anwendungen zählen die Triebwerkseinläufe von herkömmlichen Überschallflugzeugen. Hier muss die Überschallzuströmung innerhalb des Einlaufs auf Unterschall verzögert werden, um die Funktionalität der Axialverdichter zu gewährleisten. Im Auslegungspunkt erfolgt die Verzögerung üblicherweise über einen Oswatitschen Stoßdiffusor, wodurch ein maximaler Massenstrom bei minimalem Ruhedruckverlust ermöglicht wird. Außerhalb des Auslegungspunktes kann es vor allem innerhalb schmaler Einläufe zur Ausbildung eines Pseudo-Stoßsystems kommen, welches eine hochfrequente asymmetrische Anströmung des Verdichters zur Folge hat. Untersuchungen dazu finden sich beispielsweise bei [14, 16, 23].

Ram- und Scramjets

Bei Ram- und Scramjets handelt es sich ebenso um Triebwerke für Überschallflugkörper,

die jedoch im Gegensatz zu den herkömmlichen Überschallflugzeugen keine Axialverdichter benötigen. Die Forschungsschwerpunkte hierzu betreffen die Durchmischung des Treibstoffs sowie die Stabilisierung und Homogenisierung der Strömungszustände innerhalb der Brennkammer. Beispiele dazu finden sich bei [14, 57].

Verfahrenstechnik

Strahlpumpen, Ejektoren und Injektoren expandieren ein unter hohem Druck stehendes Treibmedium, um den Totaldruck eines zweiten Mediums durch Entrainment zu erhöhen. Häufig werden beide Medien zusätzlich durch eine Lavaldüse in den Überschall beschleunigt. Die Ausbildung eines Pseudo-Stoßsystems kann sowohl im divergenten Teil der Lavaldüse als auch am Austritt des Treibmediums auftreten. Beides schlägt sich im Wirkungsgrad nieder [91].

Turbinen und Verdichter

Im Betrieb außerhalb des Auslegungspunktes oder durch Fehlauslegung können Pseudo-Stoßsysteme in transsonisch durchströmten Turbinen und Verdichtern auftreten. In beiden Fällen reduziert sich der Wirkungsgrad erheblich [91]. Weiterhin kann das transiente Verhalten des Pseudo-Stoßsystems zu hohen Wechsellasten führen.

Raketentriebwerke

Die Verbrennungsprodukte eines Raketentriebwerkes werden innerhalb der Schubdüse auf Überschall beschleunigt und treten anschließend als über- oder unterexpandierter Freistrahls aus. Ist der Brennkammerdruck jedoch zu gering, so kommt es innerhalb der Düse zum Strömungsabriss. Es bildet sich eine Mischung aus Pseudo-Stoßsystem und Freistrahls. Im Falle einer asymmetrischen Abströmung kann dies zur Zerstörung des Triebwerks führen.

Windkanäle und Stoßrohre

Als Letztes seien Überschallwindkanäle und Stoßrohre genannt. In Windkanälen mit einer Überschallteststrecke zwischen zwei engsten Querschnitten muss die Bildung eines Pseudo-Stoßsystems in der Auslegung der engsten Querschnitte berücksichtigt werden. Dies gilt vor allem für Anfahrprozesse bei höheren Machzahlen. In Stoßrohren kann sich ein Pseudo-Stoßsystem bilden, wenn der senkrechte Stoß am Ende der Teststrecke an einer Wand reflektiert wird und zurück in das Testmedium läuft [91].

2.2 Experimente am Ersatzsystem Köln

Um grundlegende Erkenntnisse bezüglich der optimalen Strömungsführung in der ersten Lavaldüse zu erlangen, wurden Ersatzsysteme am DLR Köln und am SWL Aachen aufgebaut. Diese sind notwendig, da der Partikelreaktor für derartige Untersuchungen ungeeignet ist. Die Gründe hierfür sind die hohen Betriebstemperaturen um die 1400 K und die damit verbundenen erhöhten Sicherheitsanforderungen (TÜV-Zertifizierung), Materialanforderungen und Materialkosten sowie der fehlende Zugang für optische Untersuchungen.

Die Experimente am SWL Aachen dienen einerseits, wie in Kapitel 1.3.2 beschrieben, der Untersuchung der Turbulenzentwicklung in Pseudo-Stoßsystemen und andererseits der aktiven Stoßbeeinflussung durch Grenzschichtabsaugung. Im Fokus der am DLR Köln durchgeführten Experimente standen grundlegende Fragestellungen wie der Einfluss der Düsengeometrie, der Vorstoßmachzahl und der Reynoldszahl auf die Form, die Länge und das transiente Verhalten des Pseudo-Stoßsystems. Des Weiteren wurden passive Maßnahmen zur Beeinflussung von Pseudo-Stoßsystemen untersucht. Die Experimente wurden stets von TP 2 durch numerische Simulationen begleitet, um so ein tiefgreifenderes Verständnis für die physikalischen Effekte zu erlangen. Im Folgenden werden die experimentellen und numerischen Ergebnisse vorgestellt.

2.2.1 Aufbau des Experiments in Köln

Das **Ersatzsystem Köln** besteht, ähnlich wie der in Abschnitt 1.3.1 beschriebene Partikelreaktor, aus einem doppelt blockierten Lavaldüsenystem (siehe Abb. 2.5 und Abb. 2.6). Die Strömung tritt von links in die erste Lavaldüse (1,2) ein. Die beiden auswechselbaren Konturbacken (siehe Abb. 2.7) definieren den Querschnittsverlauf der modular aufgebauten ersten Lavaldüse. An Ober- und Unterseite sind 28 statische Druckmessstellen und sechs Wandtemperatursensoren angebracht. Die Seitenwände bestehen aus Quarzglasscheiben, um einen optischen Zugang zur Messstelle zu ermöglichen. Die Kanaltiefe ist in diesem Bereich konstant 15 mm. Der erste engste Querschnitt A_1^* für die hier vorgestellte Düsenkontur ist über ein Polynom vorgegeben (siehe Gleichung 2.13). Der Koordinatenursprung liegt auf der Symmetrieachse im ersten engsten Querschnitt. Die Kontur geht krümmungstetig bei $x = 3.82 \text{ mm}$ auf einen konstanten Öffnungswinkel $\alpha_{tot} = 3.0^\circ$ über, wodurch bereits 5 mm nach dem engsten Querschnitt eine Machzahl von $M \approx 1.2$ erreicht wird. Bei $x = 7.17 \text{ mm}$ geht die Kontur auf einen geringeren Öffnungswinkel von $\alpha_{tot} = 0.6^\circ$ über, um die im Partikelreaktor nötige Mischungslänge für den Präkursor zu gewährleisten. Bei $x = 70 \text{ mm}$ erhöht sich der Öffnungswinkel auf

$\alpha_{tot} = 3.0^\circ$. Dadurch wird die axiale Oszillation des Pseudo-Stoßsystems reduziert. Anschließend ($x = 195 \text{ mm}$) wird der Öffnungswinkel wieder auf $\alpha_{tot} = 0.6^\circ$ reduziert, um bei $x = 281 \text{ mm}$ formschlüssig in den doppelt-divergenten Diffusor (3) überzugehen. Da am Ersatzsystem keine Partikel produziert werden, ist der Reaktorteil (4) stark verkürzt. Der rechteckige Querschnitt geht in einen runden Querschnitt über. Im Anschluss folgt die rotationssymmetrische zweite Lavaldüse (5).

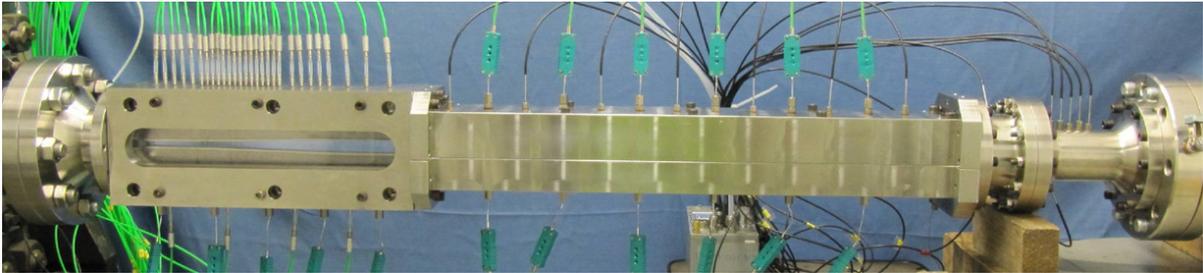


Abbildung 2.5: Foto des Ersatzsystems Köln

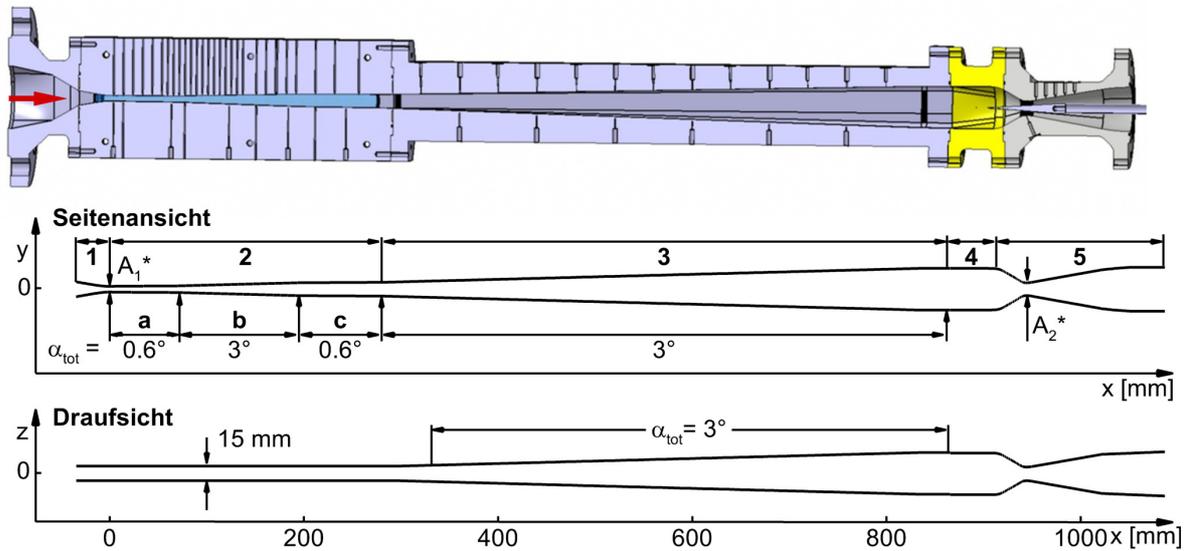


Abbildung 2.6: CAD-Zeichnung und Angaben zur Geometrie des Ersatzsystems Köln

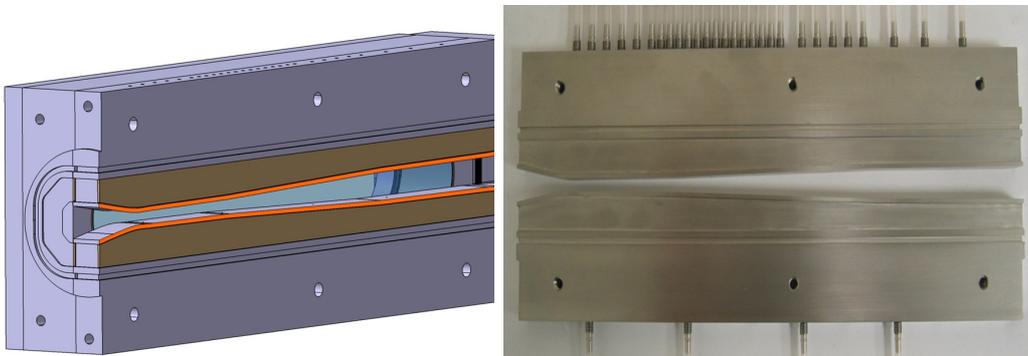


Abbildung 2.7: Modularer Aufbau der ersten Düse mit auswechselbaren Konturleisten

Die Stoßposition ist durch den zweiten engsten Querschnitt A_2^* definiert und kann mittels eines axial verschiebbaren Konus in der zweiten Düse eingestellt werden.

Im Falle eines quellenfreien, adiabaten Massestroms in einem doppelt blockierten Lavaldüsensystem ist das Verhältnis der kritisch durchströmten Querschnitte A_1^*/A_2^* invers proportional zum Verhältnis der anliegenden Ruhedrucke p_{01}/p_{02} :

$$\frac{A_1^*}{A_2^*} = \frac{p_{02}}{p_{01}}. \quad (2.1)$$

In 1-D reibungsfreien Strömungen entspricht die Ruhedruckabnahme genau den Verlusten über einen senkrechten Stoß. Die Vorstoßmachzahl M kann somit direkt aus dem Ruhedruckverhältnis p_{02}/p_{01} und dem Isentropenexponenten γ bestimmt werden:

$$\frac{p_{02}}{p_{01}} = \left[1 + \frac{2\gamma}{\gamma + 1} \cdot (M^2 - 1) \right]^{\frac{-1}{\gamma-1}} \cdot \left[1 - \frac{2}{\gamma + 1} \cdot \left(1 - \frac{1}{M^2} \right) \right]^{\frac{-\gamma}{\gamma-1}}. \quad (2.2)$$

Für ein Ruhedruckverhältnis von $p_{02}/p_{01} = 0.7$ und einem Isentropenexponenten von $\gamma = 1.4$ (Luft) beträgt die theoretische Vorstoßmachzahl demnach $M = 2.0$. Aufgrund des kleinen hydraulischen Durchmessers der Düse leisten jedoch Reibungsverluste einen signifikanten Beitrag zum Ruhedruckverlust. Da der Gesamtverlust über das Querschnittsverhältnis festgelegt ist (Gleichung 2.1), müssen die Stoßverluste entsprechend abnehmen, weshalb eine maximale Machzahl von $M \approx 1.7$ erreicht wird (siehe Kapitel 2.3.2).

Messtechnik

Der statische Druck wurde an bis zu 96 Druckmessstellen mit einer Genauigkeit von mindestens ± 3.5 mbar aufgenommen. Hierfür wurden unterschiedliche Geräte der Firma Esterline Pressure Systems Inc. (Miniature Electronic Pressure Scanners ESP-32 HD und ESP-16 HD sowie Ethernet Intelligent Pressure Scanners Modell 9116 EIPS) eingesetzt. Die hochfrequenten Messungen wurden lokal mittels fünf Kulite-Sensoren (XTL-IA-140M) mit einer Genauigkeit von mindestens ± 6.8 mbar und einer Abtastrate von 10 kHz durchgeführt. Die Strömungsvisualisierung der Pseudo-Stoßsysteme erfolgt über eine Schlierenoptik in der üblichen Z-Anordnung. Das gesamte Pseudo-Stoßsystem wurde mit einer maximalen Bildfrequenz von 10 Hz mittels einer 11 Megapixel PROSILICA GE4000 CCD-Kamera und einer 50-ns Blitzlampe aufgenommen. Die zeitlich hoch aufgelösten Detailaufnahmen (bis zu 120 kHz) erfolgten mit einer 1 Megapixel monochromatic Photron Fastcam highspeed Kamera. Für die Farbschlierenbilder wurde ein Amicprisma im ersten Fokuspunkt und eine Schlitzblende im zweiten Fokuspunkt verwendet. Die Bildgebung erfolgte mit einer 6 Megapixel Kodak DCS760C Spiegelreflexkamera.

2.2.2 Messergebnisse

Im Folgenden wird ein Überblick über die experimentellen Ergebnisse dargestellt. Für das Experiment wird dazu ein Basistestfall mit einem Einlassruhedruck von $p_{01} = 6 \text{ bar}$ und einer Einlassruhetemperatur von $T_{01} = 300 \text{ K}$ definiert. Der Ruhedruck im Reaktor wird über die Lanze in der zweiten Düse eingestellt. Untersucht werden die Druckverhältnisse $p_{02}/p_{01} = 0.60$, $p_{02}/p_{01} = 0.65$ und $p_{02}/p_{01} = 0.70$.

Um den Einfluss der Geometrie darzustellen, wird der dimensionslose statische Wanddruckverlauf mit einer analytischen reibungsfreien 1-D Rechnung verglichen. Die analytische Lösung wird rein auf Basis der Düsenkontur (siehe Tab. 2.1) errechnet. Ausgehend von der Fläche A_1^* im ersten engsten Querschnitt kann die Machzahl $M(x)$ in Abhängigkeit von der vorliegenden Querschnittsfläche $A(x)$ wie folgt iterativ bis zum Stoß berechnet werden:

$$\frac{A(x)}{A_1^*} = \frac{1}{M(x)} \left(\frac{1 + \frac{\gamma-1}{2} \cdot M(x)^2}{\frac{\gamma+1}{2}} \right)^{\frac{1}{2} \cdot \frac{\gamma+1}{\gamma-1}}. \quad (2.3)$$

Die Vorstoßmachzahl ist über das jeweilige Ruhedruckverhältnis nach Gleichung 2.2 definiert. Der weitere Verlauf der Machzahl kann wieder mit Gleichung 2.3 berechnet werden. Statt A_1^* muss jedoch A_2^* nach Gleichung 2.1 verwendet werden.

Der statische Druck p kann über die Isentropenbeziehung

$$\frac{p_0}{p} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} \cdot M^2 \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (2.4)$$

aus der Machzahl M und dem jeweils vorliegenden Ruhedruck p_0 bestimmt werden.

Der dimensionslose Druckverlauf p/p_{01} über die gesamte Anlage (ohne zweite Düse) ist in Abb. 2.8 für den Basistestfall dargestellt. Er wird aus dem statischen Druck p und dem Ruhedruck am Einlass p_{01} gebildet. Die Messergebnisse sind als diskrete Punkte angegeben, die analytisch berechneten Verläufe werden durch Linien dargestellt (Legende im Bild). Signifikante Unterschiede sind im Bereich der ersten Lavaldüse zu erkennen. Ab dem doppelt divergenten Diffusor (bei $x = 294.729 \text{ mm}$) spielen reibungsinduzierte Druckverluste aufgrund der geringen Strömungsgeschwindigkeit eine untergeordnete Rolle und die Messergebnisse stimmen gut mit der analytischen Lösung überein.

Um genauer auf die Unterschiede einzugehen, ist der **Ausschnitt B** in Abb. 2.9 vergrößert dargestellt. Die Änderungen im Öffnungswinkel der ersten Düse werden von der analytischen Lösung als deutliche Knicke im Druckverlauf wiedergegeben. Im ersten

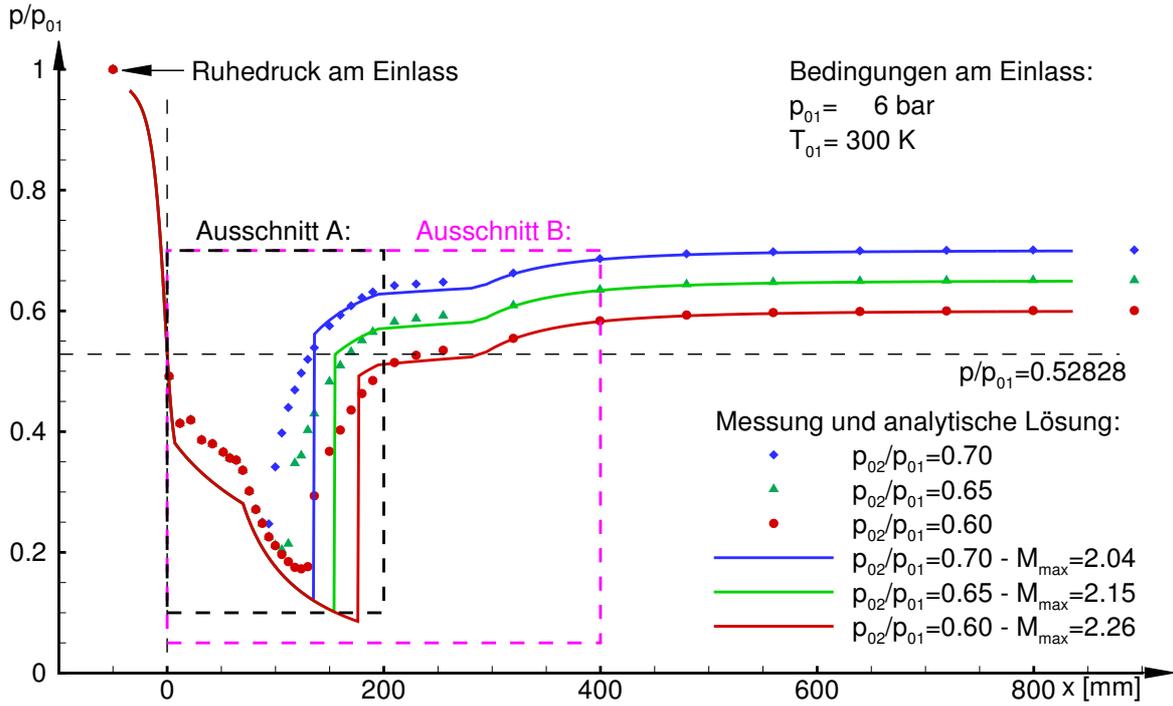


Abbildung 2.8: Gegenüberstellung des experimentellen und des analytisch berechneten reibungsfreien dimensionslosen Druckverlaufs

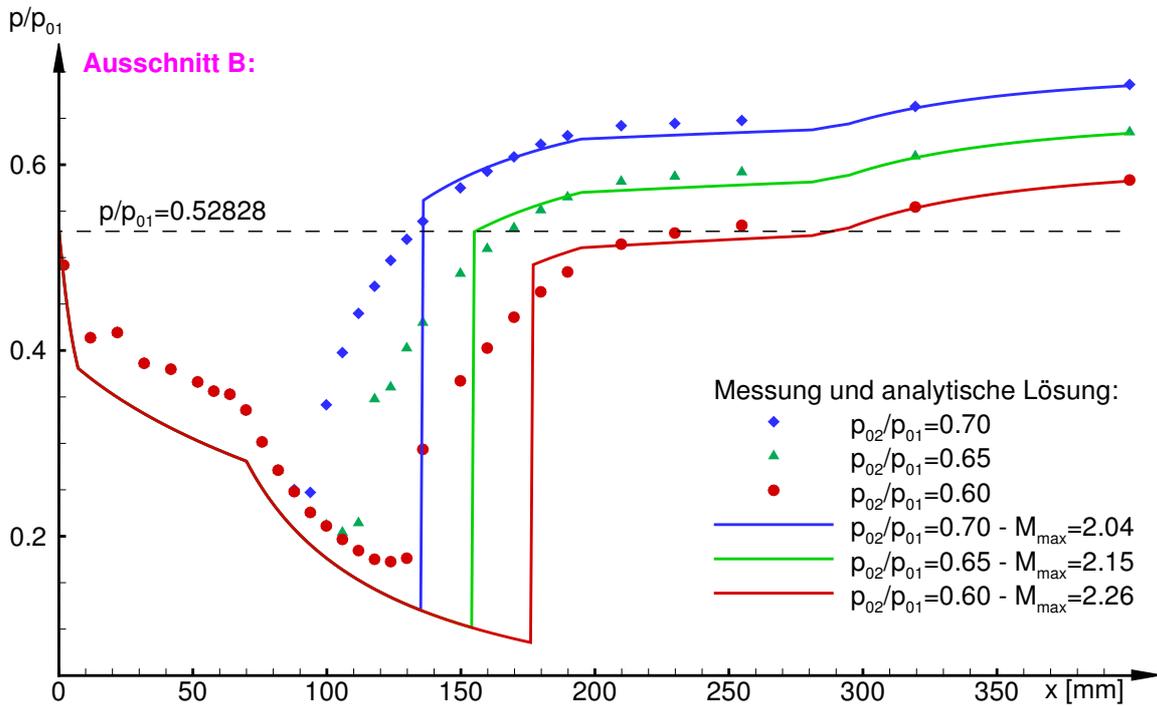


Abbildung 2.9: Ausschnitt B aus Abbildung 2.8

Segment mit einem Öffnungswinkel von $\alpha = 0.3^\circ$ liegt der experimentelle Druckverlauf aufgrund der Reibungseffekte deutlich über der analytischen Lösung. Hier führt die Verdrängungsdicke der Grenzschicht zu einem virtuell kleineren Querschnitt mit einer geringeren Machzahl und somit einem höheren statischen Druck. Erwartungsgemäß hat der Gegendruck keinen Einfluss auf den statischen Druck im Überschall.

Die Stoßpositionen unterscheiden sich deutlich, da (wie bereits in Kapitel 2.1.1 beschrieben) die Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung zur Bildung eines stromauf verschobenen Pseudo-Stoßsystems führt. Bemerkenswert ist jedoch, dass der Nachstoßdruck der analytischen Rechnung erst über den Messungen und anschließend darunter liegt. Die Ursache dafür ist, dass in der analytischen Rechnung der gesamte Ruhedruckverlust über den Stoß generiert wird. Somit ergeben sich eine höhere Vorstoßmachzahl und eine entsprechend geringere Nachstoßmachzahl. Die Strömungsgeschwindigkeit im Experiment liegt hier noch deutlich über der analytisch berechneten Geschwindigkeit. Im darauffolgenden Bereich steigt der statische Druck im Experiment trotz höherer Geschwindigkeit über den analytisch berechneten Druck, da der Ruhedruckverlust noch nicht abgeschlossen ist. Erst am Auslass stimmen der statische Druck und der Ruhedruck wieder überein.

Variation der Einlassrandbedingungen

Da die Machzahl der analytischen Rechnung nur vom Querschnittsverlauf abhängt, ist der dimensionslose Druckverlauf unabhängig von den Einlassrandbedingungen. Unberücksichtigt ist hier jedoch der Grenzschichteinfluss, welcher mit der Reynoldszahl skaliert. Dieser soll hier vereinfacht abgeschätzt werden.

Die turbulente Grenzschichtdicke δ_{turb} kann mit der Lauflänge x und der Reynoldszahl Re wie folgt abgeschätzt werden [122]:

$$\delta_{turb} = x \cdot \frac{0.14}{Re^{0.7}} . \quad (2.5)$$

Möchte man bei der Variation der Einlassrandbedingungen die lokale Machzahl in der Düse konstant halten, so muss die Grenzschichtdicke, und daher die Reynoldszahl konstant gehalten werden:

$$Re = \frac{u_\infty \cdot x}{\nu} = konst. . \quad (2.6)$$

Die Geschwindigkeit der ungestörten Strömung u_∞ kann als Produkt der Schallgeschwindigkeit $c_{(x)}$ und der Machzahl $M_{(x)}$ dargestellt werden. Die kinematische Viskosität ν hingegen kann durch das Verhältnis der dynamischen Viskosität μ und der Dichte $\rho_{(x)}$ ersetzt werden:

$$Re = \frac{c_{(x)} \cdot M_{(x)} \cdot x \cdot \rho_{(x)}}{\mu_{(x)}} = konst. . \quad (2.7)$$

Das Quadrat der Schallgeschwindigkeit $c_{(x)}$ ist das Produkt der Gaskonstante R , des Isentropenexponenten γ und der statischen Temperatur $T_{(x)}$. Nimmt man weiter an, dass die dynamische Viskosität μ vereinfacht ungefähr mit $\mu \propto T^{0.5}$ skaliert ($\mu_{Luft,300\text{ K}} \propto T^{0.73}$), so kann Gleichung 2.7 weiter umgeformt werden zu

$$Re = \frac{\gamma^{0.5} \cdot R^{0.5} \cdot T_{(x)}^{0.5} \cdot M_{(x)} \cdot x \cdot \rho_{(x)}}{C \cdot T_{(x)}^{0.5}} \Rightarrow Re \propto \rho . \quad (2.8)$$

Die Reynoldszahl ist dann direkt proportional zur Dichte ρ bzw. Ruhedichte ρ_0 . Nach dem idealen Gasgesetz hat eine Erhöhung des Ruhedrucks bei festgehaltener Totaltemperatur zur Folge, dass die Ruhedichte und somit die Reynoldszahl steigt:

$$p_0 = \rho_0 \cdot R \cdot T_0 . \quad (2.9)$$

Nach Gleichung 2.5 folgt, dass dadurch die Grenzschichtdicke bzw. die Verdrängungsdicke abnimmt. Im Überschallteil der ersten Düse sollte so eine etwas höhere Machzahl erreicht werden und der statische Druck wiederum leicht abnehmen.

In Abb. 2.10 ist der **Ausschnitt A** aus Abb. 2.8 für verschiedene Ruhedrucke

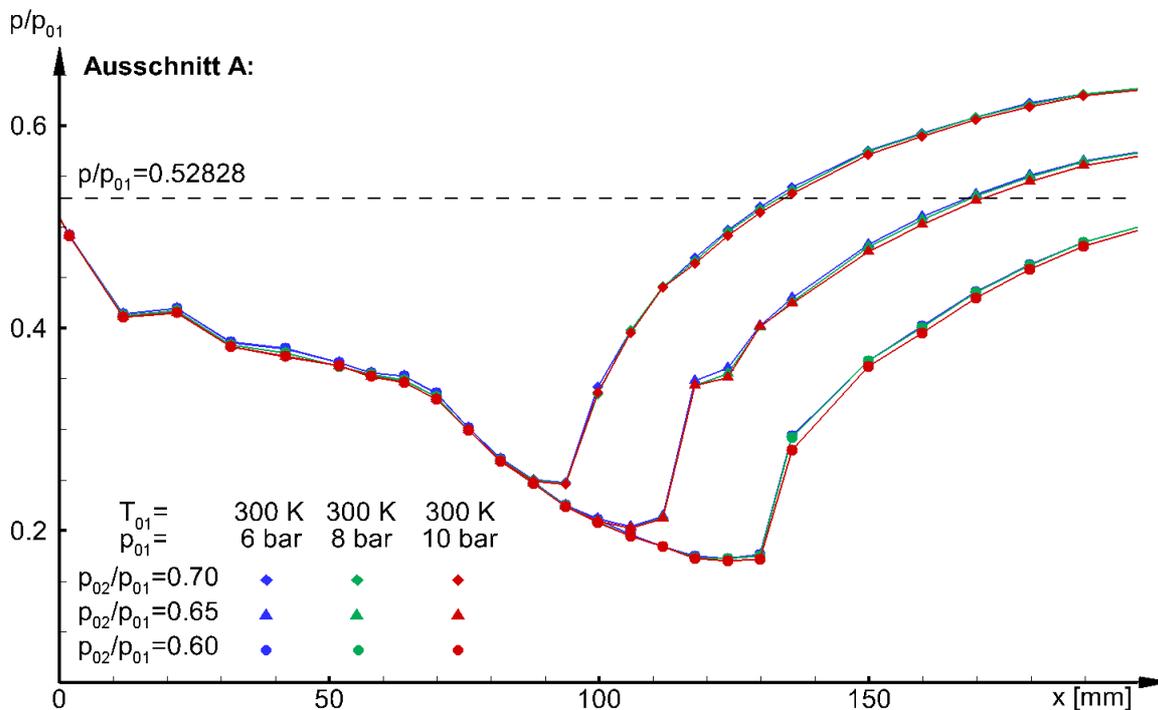


Abbildung 2.10: Experimenteller Druckverlauf für eine Variation des Einlassruhedrucks p_{01} bei festgehaltener Ruhetemperatur T_{01} : Dargestellt ist Ausschnitt A aus Abbildung 2.8.

($p_{01} = 6 - 10 \text{ bar}$) bei konstanter Ruhetemperatur ($T_{01} = 300 \text{ K}$) dargestellt. Zur besseren Visualisierung wurden die diskreten Messpunkte mit Linien verbunden. Der Einfluss der Reynoldszahl ist nur schwach ausgeprägt, bestätigt aber die vorangegangene Abschätzung.

Auf dieselbe Weise wurde der Einfluss der Ruhetemperatur untersucht. Nach Gleichung 2.9 sinkt die Ruhedichte und somit die Reynoldszahl bei festgehaltenem Ruhedruck und zunehmender Ruhetemperatur. Dies hat eine leichte Zunahme der Grenzschichtdicke und damit eine abnehmende Machzahl zur Folge. Entsprechend ist mit einer schwachen Zunahme des Drucks zu rechnen. Wie jedoch Abb. 2.11 zeigt, ist der Effekt sehr viel stärker ausgeprägt als erwartet. Dafür spricht, dass die dynamische Viskosität von Luft entgegen der Annahme in Gleichung 2.8 mit $\mu \propto T^{0.73}$, statt mit $\mu \propto T^{0.5}$ skaliert. Eine derart starke Zunahme im Druck lässt sich dadurch dennoch nicht erklären. Weiterhin fällt auf, dass die Abweichungen nur im Überschallteil auftreten, wohingegen im Unterschallbereich kein Einfluss der Ruhetemperatur identifiziert werden kann. Aufgrund der schlanken Düse führen hier kleinste Abweichungen im Konturverlauf bereits zu signifikanten Änderungen im Druckverlauf. Eine naheliegende Erklärung ist, dass Wärmedehnung in den Bauteilen zu einem größeren engsten Querschnitt A_1^* führt und daher ein neuer Querschnittsverlauf mit geringerem Machzahlverlauf vorliegt.

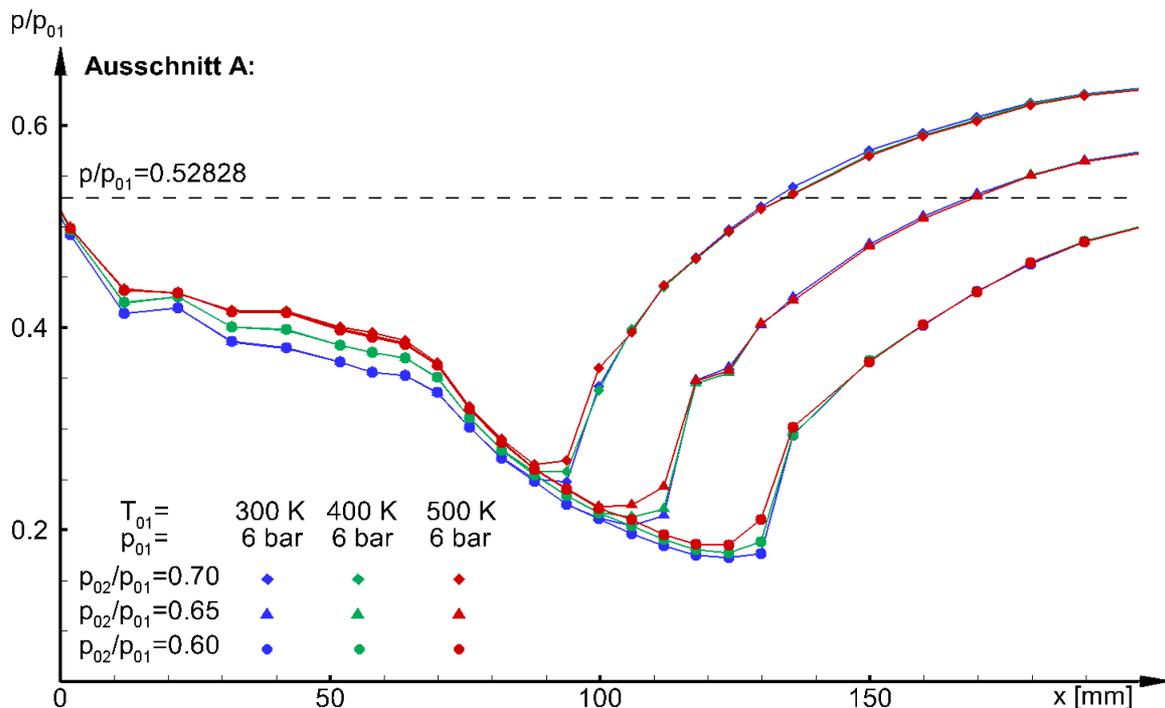


Abbildung 2.11: Experimenteller Druckverlauf für eine Variation der Einlassruhetemperatur T_{01} bei festgehaltenem Ruhedruck p_{01} : Dargestellt ist Ausschnitt A aus Abbildung 2.8.

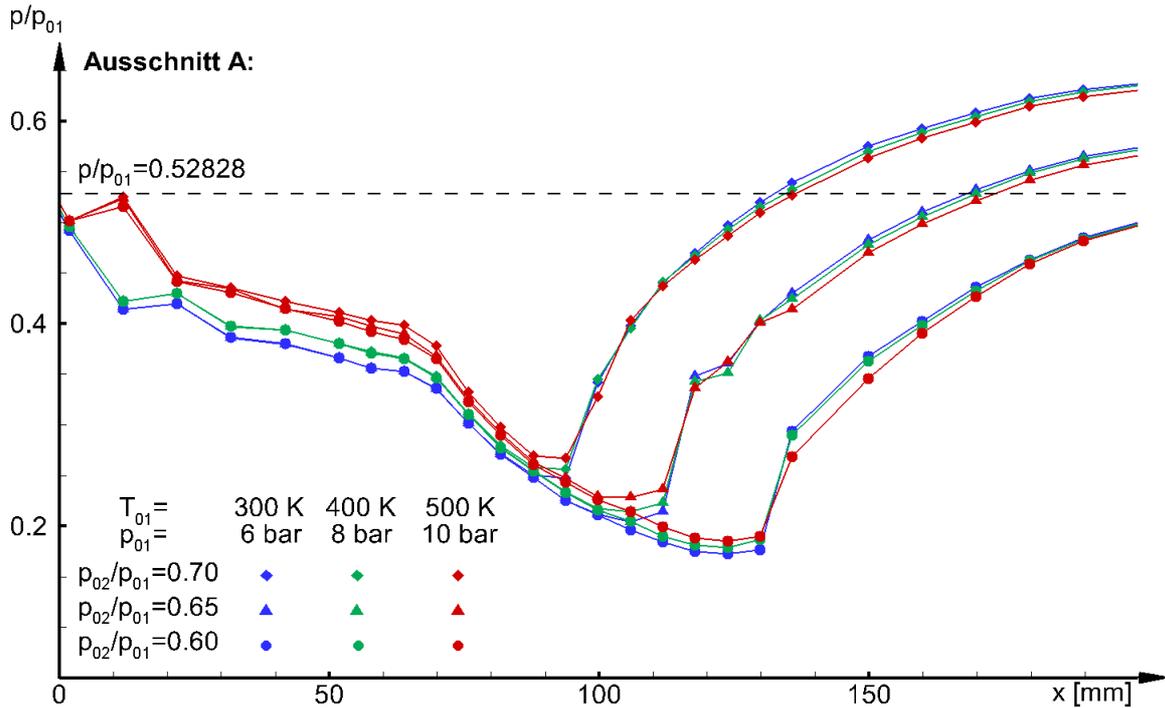


Abbildung 2.12: Experimenteller Druckverlauf für eine Variation des Einlassruhedrucks p_{01} und der Einlassruhetemperatur T_{01} bei festgehaltener Ruhedichte ρ_{01} : Dargestellt ist Ausschnitt A aus Abbildung 2.8.

Eine Variation der Einlassrandbedingungen bei festgehaltener Ruhedichte sollte nach Gleichung 2.8 dazu führen, dass jeweils dieselbe Reynoldszahl, dieselbe Grenzschichtdicke und somit auch derselbe Druckverlauf vorliegen. Wie in Abb. 2.12 zu sehen ist, treten jedoch auch hier stark ausgeprägte Abweichungen im Überschallbereich auf. Für den Extremfall mit einer Ruhetemperatur von $T_{01} = 500 \text{ K}$ und einem Ruhedruck von $p_{01} = 10 \text{ bar}$ lässt sich sogar bei $x \approx 70 \text{ mm}$ eine Stromaufwirkung des anliegenden Gegendrucks feststellen. Weiterhin tritt kurz nach dem engsten Querschnitt bei $x = 10 \text{ mm}$ eine deutliche Druckspitze auf, die nur knapp unter dem kritischen Druckverhältnis liegt. Im Gegensatz zum vorherigen Fall sind die Abweichungen auch im Bereich des Pseudo-Stoßsystems und stromab (bis $x \approx 400 \text{ mm}$) deutlich zu erkennen.

Um die Abweichungen von dem erwarteten Druckverlauf darzustellen, wird in Abb. 2.13 dem Kapitel 2.3 vorgegriffen: Dargestellt sind die Simulationsergebnisse für denselben Fall mit konstanter Dichte sowie die Messergebnisse für den Basistestfall mit $p_{01} = 6 \text{ bar}$ und $T_{01} = 300 \text{ K}$. Der simulierte Druckverlauf ist im Falle konstanter Dichte nahezu identisch und die unterschiedlichen Kurven sind nicht voneinander zu unterscheiden. Dies legt nahe, dass die für Gleichung 2.8 getroffenen Annahmen gerechtfertigt sind, und bekräftigt die Vermutung, dass die in Abb. 2.11 und Abb. 2.12 auftretenden Abweichungen im Druckverlauf durch experimentelle Fehler zu erklären sind.

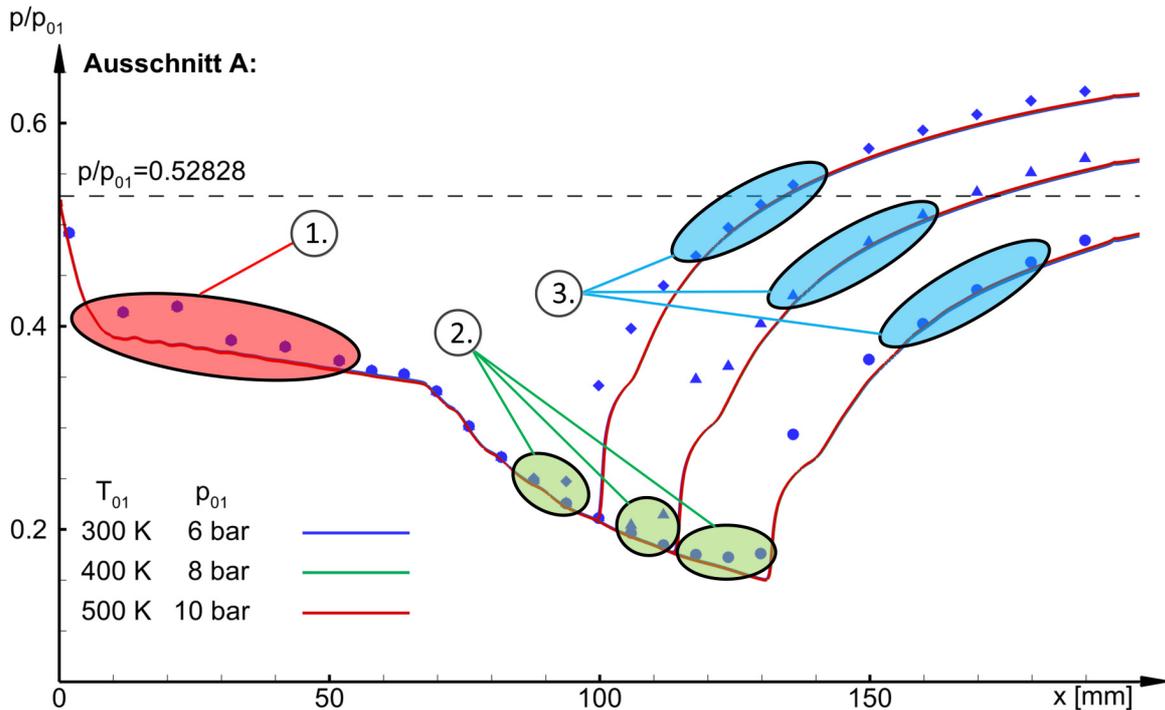


Abbildung 2.13: Simulationsergebnisse für die in Abb. 2.12 dargestellten Messergebnisse
Variation des Einlassruhedrucks p_{01} und der Einlassruhetemperatur T_{01} bei festgehaltener Ruhedichte ρ_{01} : Dargestellt ist Ausschnitt A aus Abbildung 2.8.
Die Messergebnisse entsprechen dem Basistestfall mit $p_{01}=6 \text{ bar}$ und $T_{01}=300 \text{ K}$.

Des Weiteren ist Abb. 2.13 zu entnehmen, dass der simulierte Druckverlauf in drei Bereichen (rot, grün und blau markiert) vom Experiment abweicht:

- ① Kurz nach dem engsten Querschnitt tritt eine Erhöhung des Drucks mit einem lokalen Maximum bei $x = 22 \text{ mm}$ auf. Ab etwa $x = 50 \text{ mm}$ stimmen Experiment und Simulation wieder überein.
- ② Im Gegensatz zur Simulation tritt im Experiment unabhängig von der Vorstoßmachzahl kurz vor dem Stoß ein Druckanstieg auf. Diese Vorkompression ist bis zu 15 mm stromauf der Stoßposition messbar und nicht durch das Aufdicken der Grenzschicht am Stoßfuß zu erklären.
- ③ Die Stoßposition wird von der Simulation leicht stromab verschoben wiedergegeben. Im Bereich des Pseudo-Stoßsystems ist der Druck daher etwas geringer. Es lässt sich aber ein Bereich identifizieren, in dem sich die Messwerte lokal den Simulationsergebnissen nähern, und bei einer korrekten Vorhersage der Stoßposition einen höheren Druck als die Simulation wiedergeben würden.

Im folgenden Abschnitt wird auf mögliche Fehlerquellen eingegangen.

2.2.3 Mögliche Fehlerquellen

Auf experimenteller Seite lassen sich die wichtigsten potenziellen Fehlerquellen sowie deren mögliche Gegenmaßnahmen wie folgt zusammenfassen:

- **Abweichung von der Auslegungsgeometrie:** Das Polynom (Gleichung 2.13), welches den axialen Konturverlauf im engsten Querschnitt beschreibt, wurde im CAD-Programm zur Fertigung durch einen Spline ersetzt. Gleichwohl die Abweichungen gegenüber dem Spline gering sind, ist der statische Druck im transsonischen Bereich ($M = 0.95-1.2$) aufgrund der schlanken Geometrie sehr sensitiv gegenüber der lokalen Düsengeometrie. Des Weiteren ist die Fertigungsgenauigkeit begrenzt. Eine Düse mit größerem engsten Querschnitt würde die Sensitivität stark reduzieren. Dies wurde allerdings aus Kostengründen nicht umgesetzt.
- **Abweichungen durch unterschiedlichen Zusammenbau:** Im Laufe der Untersuchungen wurde festgestellt, dass sich der Druckverlauf nach einem Umbau bei gleichen Testbedingungen verändert hat. Als Ursache konnten u. a. unterschiedlich stark verspannte Bauteile identifiziert werden. Die einzelnen Komponenten wurden daher später verstiftet, um einen nahezu identischen Zusammenbau zu garantieren.
- **Thermische Deformation der Anlage:** Wärmeausdehnung im Bereich des engsten Querschnitts hat zur Folge, dass sich das gesamte Querschnittsverhältnis und somit die lokale Machzahl stromab ändert. Ebenso ändern sich die Geometrie und die Gesamtlänge der Anlage und daher auch die Positionen der Messstellen. Die Gesamtlänge der Anlage bei einer Ruhetemperatur von $T_{01} = 500 \text{ K}$ erhöht sich um $\approx 5 \text{ mm}$ gegenüber Versuchen mit $T_{01} = 300 \text{ K}$.
- **Schmelzen der Dichtmittel:** Bei höheren Temperaturen sind bei manchen Versuchen Dichtmaterialien geschmolzen und in den Kanal geronnen. Um sowohl thermische Deformation als auch das Schmelzen der Dichtmittel als Fehlerquelle auszuschließen, wurde der Fokus der Untersuchungen auf Kaltgasexperimente verlagert.
- **Leckagen:** Im Laufe der Untersuchungen wurden v. a. bei höheren Drücken immer wieder Leckagemassenströme identifiziert. Dieses Problem kann mit niedrigeren Vordrücken umgangen werden. Geringe Leckagemassenströme können aber trotz aufwendiger Überprüfung nicht zu 100 % ausgeschlossen werden.
- **Spalte zw. Bauteilen:** Im Bereich der ersten Düse wurden schmale Spalte identifiziert, auf deren Einfluss in den folgenden Kapiteln weiter eingegangen wird. Durch Abdichtung mittels einer Aluminiumfolie konnten diese weitestgehend vermieden werden.

2.2.4 Sekundärexperiment zur Untersuchung des Spalteinflusses

Um einen optischen Zugang zur Messstelle zu gewährleisten, werden geschlossene Windkanäle üblicherweise mit Quarzglas-Seitenfenstern versehen. Eine Dichtung aus Karbon zwischen Metallkontur und den Seitenfenstern verhindert die Übertragung von Spannungen in die Seitenfenster und erhöht die Dichtheit. Der modulare Aufbau der ersten Düse ist in Abb. 2.14 (rechts) gezeigt. Die Konturbacken weisen über den gesamten Bereich der Seitenfenster eine Aussparung auf (braun dargestellt), in welche die Karbondichtung eingebracht wird. Die Seitenfenster liegen ausschließlich auf der Karbondichtung auf. Die Kanaltiefe im zusammengebauten Zustand beträgt 15 mm, wobei die obere und untere Metallkontur eine Tiefe von nur 14.8 mm aufweist. Es verbleibt entlang der gesamten ersten Düse auf beiden Seiten ein Spalt von $\Delta z \approx 0.1 \text{ mm}$ Breite und $\Delta y = 2 \text{ mm}$ Höhe (orange dargestellt). Abbildung 2.14 (mittig) zeigt einen Schnitt durch den engsten Querschnitt der Düse im zusammengebauten Zustand. Die Abmessungen des engsten Querschnitts sind in Abb. 2.14 (rechts) dargestellt.

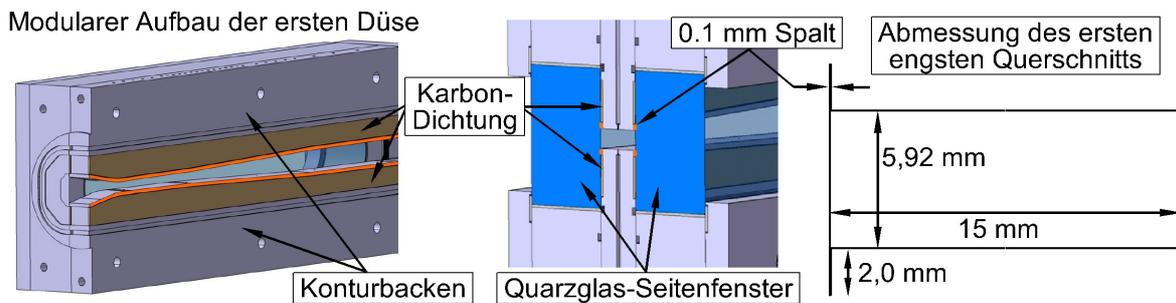


Abbildung 2.14: Modularer Aufbau der ersten Düse ohne Seitenwand (links)
Schnitt durch den engsten Querschnitt im zusammengebauten Zustand (mittig)
Abmessungen des engsten Querschnitts mit Spalten (rechts)

Um den Einfluss dieses Spaltes zu quantifizieren, wurden drei verschiedene Konfigurationen experimentell untersucht. Eine Skizze der Originalgeometrie ist in Abb. 2.15 b) dargestellt. Die Konturbacke reicht bis auf 0.1 mm an die Seitenfenster heran. Darüber befindet sich die Aussparung für die Karbondichtung.

Um eine spaltfreie Konfiguration zu verwirklichen, wurde der Spalt mit einer dünnen Aluminiumfolie ausgefüllt (Abb. 2.15 a). Dabei ist anzumerken, dass eine vollständige Abdichtung des Spaltes nicht sichergestellt werden kann. Außerdem wurde die Folie so gut wie möglich an die Kontur angepasst. Spätere Schlierenbilder zeigen, dass dadurch an manchen Stellen kleine Fransen von der Aluminiumfolie in den Kanal reichen und auf diese Weise die Strömung beeinflussen.

In der dritten Konfiguration wurde die Spaltweite auf 0.2 mm erweitert. Um die Konturbacken nicht zu bearbeiten und folglich für weitere Versuche unbrauchbar zu machen,

wurde stattdessen eine Aluminiumfolie auf die Karbondichtung aufgebracht. Dadurch erweitert sich die Kanaltiefe auf 15.2 mm . Da die Seitenwände parallel sind, ändert sich dadurch nur der Gesamtmassenstrom, nicht aber der Verlauf des Querschnittsverhältnisses bzw. der Verlauf der Machzahl. Nach der ersten Düse springt die Seitenwand wieder zurück auf die Originalbreite von 15 mm . Durch den festgehaltenen Gegendruck wird daher die Stoßposition minimal beeinflusst, weshalb eine Vergleichbarkeit zwischen den verschiedenen Konfigurationen nicht vollständig gegeben ist. Die lokale Erweiterung der Kanaltiefe wurde in der Simulation jedoch berücksichtigt, sodass ein Vergleich der numerischen und experimentellen Ergebnisse für die Konfiguration mit 0.2 mm Spaltweite gerechtfertigt ist.

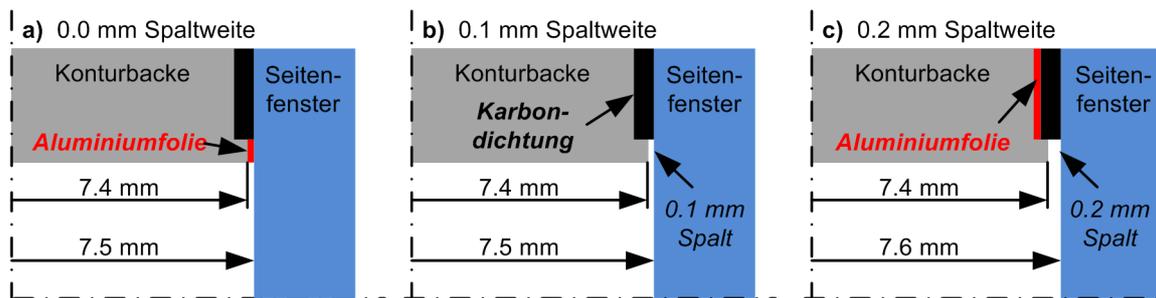


Abbildung 2.15: Experimenteller Aufbau zur Untersuchung des Spalteinflusses: spaltfrei (a), 0.1 mm Spaltweite (b) und 0.2 mm Spaltweite (c).

Auf die experimentellen Ergebnisse und die entsprechenden Simulationsergebnisse wird ausführlich in Kapitel 2.3.4 und in Kapitel 2.4 eingegangen.

2.3 Simulation der spaltfreien Konfiguration

2.3.1 Numerisches Modell

Zur Berechnung der Strömung im Kanal kommt ein Finite-Volumen-Verfahren zum Einsatz. Die Simulationen werden mit dem kommerziellen druckbasierten Solver Ansys CFX (Version 12.1 und 14.0) durchgeführt. Gelöst werden die Favre- und Reynolds-gemittelten kompressiblen Navier-Stokes Gleichungen. Den Testgasbedingungen entsprechend werden die Zustände mittels Idealgas-Gleichungen berechnet. Die spezifische Wärmekapazität beträgt $c_p = 1.0044 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. Die dynamische Viskosität μ sowie die Wärmeleitfähigkeit λ werden temperaturabhängig nach dem Sutherland-Modell beschrieben:

$$\mu = \mu_{ref} \cdot \left(\frac{T}{T_{ref,\mu}} \right)^{1.5} \cdot \frac{T_{ref,\mu} + S_\mu}{T + S_\mu} \quad (2.10)$$

$$\lambda = \lambda_{ref} \cdot \left(\frac{T}{T_{ref,\lambda}} \right)^{1.5} \cdot \frac{T_{ref,\lambda} + S_\lambda}{T + S_\lambda} \quad (2.11)$$

mit

bzw.

$$\begin{array}{ll} \mu_{ref} &= 1.72 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{s}, & \lambda_{ref} &= 2.418 \cdot 10^{-2} \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}, \\ T_{ref,\mu} &= 273.15 \text{ K}, & T_{ref,\lambda} &= 273.15 \text{ K}, \\ S_\mu &= 127.67 \text{ K}, & S_\lambda &= 176.673 \text{ K}. \end{array}$$

Die Zeitintegration erfolgt über das implizite BDF(2)-Verfahren (Second Order Backward Differentiation Formula). Dieses ist robust und formal unbedingt stabil [10]. Bei instationären Strömungen wurde für die durchgeführten Simulationen ein globaler physikalischer Zeitschritt zwischen $\Delta t = 10^{-7} \text{ s}$ und $\Delta t = 10^{-8} \text{ s}$ verwendet. Stationäre Probleme werden sowohl über einen globalen physikalischen Zeitschritt als auch mittels eines lokalen Zeitschrittverfahrens gelöst. Die Flüsse werden über das High Resolution Verfahren von CFX berechnet. Dieses Verfahren basiert auf einer nicht-linearen Blending-Funktion zwischen einem Upwind Verfahren erster Ordnung und einem Upwind Verfahren zweiter Ordnung. Die turbulenten Größen werden (basierend auf der Empfehlung von Ansys CFX) nur erster Ordnung berechnet, da keine signifikante Verbesserung der Lösung bei gleichzeitig stark erhöhtem Rechenaufwand zu erwarten ist. Weiterhin wird die High-Resolution Variante der Rhie Chow Interpolation verwendet, um eine verbesserte Druck-Geschwindigkeits-Kopplung bei Stößen zu erhalten. Dadurch werden lokale numerische Oszillationen leicht reduziert.

Eine ausführliche Erläuterung der angewendeten Methoden findet sich in [10].

2.3.2 Gitterstudie

Um die Auswirkung der räumlichen Auflösung auf das Ergebnis zu quantifizieren, wurde im Vorfeld der Untersuchungen eine ausführliche Gitterstudie durchgeführt. Diese wird hier exemplarisch für das BSL-EARSM Turbulenzmodell gezeigt, da dieses die besten Ergebnisse liefert (siehe Kapitel 2.3.3) und daher im Anschluss für alle weiteren Untersuchungen verwendet wurde. Die Gitterkonvergenz wurde jedoch für alle gezeigten Turbulenzmodelle überprüft. Um den Einfluss experimenteller Fehlerquellen gering zu halten (siehe Kapitel 2.2.3), werden sowohl für die Gitterstudie als auch für die Untersuchung der verschiedenen Turbulenzmodelle die Randbedingungen des Basistestfalls gewählt. Die Ruhebedingungen am Einlass sind $p_{01} = 6 \text{ bar}$ und $T_{01} = 300 \text{ K}$. Der statische Druck am Auslass beträgt $p = 4.8 \text{ bar}$, das entsprechende Ruhedruckverhältnis beträgt $p_{02}/p_{01} = 0.7$. Die Wandtemperatur T_W ist an die Messwerte gefittet und wird in der Simulation durch die Gleichung 2.12 vorgegeben.

$$T_W(x) = T_{ref} \cdot \sum_{i=0}^6 d_i \left(\frac{x}{l_{ref}} \right)^i \quad (2.12)$$

Die Konstanten sind:

$$\begin{aligned} x &= \text{Abstand von } A_1^* \text{ in } [mm], & l_{ref} &= 1 \text{ mm} \\ T_{ref} &= 1 \text{ K}, & d_3 &= -1.5826 \cdot 10^{-06}, \\ d_0 &= +2.9332 \cdot 10^2, & d_4 &= +1.7119 \cdot 10^{-09}, \\ d_1 &= -9.1309 \cdot 10^{-02}, & d_5 &= -7.6983 \cdot 10^{-13}, \\ d_2 &= +6.5255 \cdot 10^{-04}, & d_6 &= +7.6754 \cdot 10^{-17}. \end{aligned}$$

Die exakte Geometrie ist in Tab. 2.1 wiedergegeben. Das Polynom für den Bereich des engsten Querschnitts wird durch Gleichung 2.13 beschrieben. Zwischen den Abschnitten C-D, D-E, G-H und H-I bestehen Verrundungen mit dem Radius $r=200 \text{ mm}$. Die Ecken des rechteckigen Kanals der Abschnitte H und I sind ebenso verrundet. Das berechnete Gebiet endet bei $x=865.56 \text{ mm}$ mit einer Verrundung von $r=5 \text{ mm}$ und einem Querschnitt von $A=464.657 \text{ mm}^2$.

Im Laufe der Untersuchungen hat sich gezeigt, dass es von Vorteil ist, die Verrundungen in den Ecken der Abschnitte H und I durch eine flächengleiche rechteckige Geometrie zu ersetzen. Dadurch wird die Gitterqualität im relevanten Bereich der ersten Düse entscheidend gesteigert, da ein H-Gitter statt eines O-Gitters verwendet werden kann. Der Druckverlauf und die Stoßposition bleiben aufgrund konstanter Querschnittsflächen unbeeinflusst. Des Weiteren wurde auf die Simulation der zweiten Düse verzichtet, da für jeden Betriebszustand ein neues Gitter mit neuer Keilposition nötig wäre. Stattdessen

wurde am Auslass eine Druckrandbedingung gesetzt, die an die Messung im Reaktor angepasst wird. Als letzte Maßnahme wurde die Symmetrie des Kanals genutzt, um den Rechenaufwand moderat zu halten. In den folgenden Simulationen wurde nur ein Viertel des Kanals berechnet. Lediglich zur Untersuchung der Symmetrie-Brechung wurde der halbe bzw. der ganze Kanal simuliert (siehe Kapitel 2.4.4).

Tabelle 2.1: Geometrie des berechneten Gebiets

Abschnitt	x_{start} [mm]	y -Kontur	z -Kontur
A	-34.540	$\alpha = -10^\circ$	7.50 mm
B	-22.930	Gleichung 2.13	7.50 mm
C	3.820	$\alpha = +1.5^\circ$	7.50 mm
D	7.170	$\alpha = +0.3^\circ$	7.50 mm
E	70.000	$\alpha = +1.5^\circ$	7.50 mm
F	195.000	$\alpha = +0.3^\circ$	7.50 mm
G	281.931	$\alpha = +1.5^\circ$	7.50 mm
H	294.729	$\alpha = +1.5^\circ$	$\beta = +1.5^\circ$
I	836.241	21.68 mm	21.68 mm

Polynom für den ersten engsten Querschnitt:

$$y(x) = l_{ref} \cdot \sum_{i=0}^6 d_i \left(\frac{x}{l_{ref}} + 22.93 \right)^i. \quad (2.13)$$

Die Konstanten sind:

$$\begin{aligned} x &= \text{Abstand von } A_1^* \text{ in [mm]}, \\ l_{ref} &= 1 \text{ mm}, & d_3 &= +1.52798578740639 \cdot 10^{-4}, \\ d_0 &= +5.68224916647265, & d_4 &= -8.94031304460155 \cdot 10^{-6}, \\ d_1 &= -1.77632698070846 \cdot 10^{-1}, & d_5 &= +5.45928945559081 \cdot 10^{-7}, \\ d_2 &= +0, & d_6 &= -1.02048246477148 \cdot 10^{-8}. \end{aligned}$$

Um Gitterkonvergenz zu erreichen, wurde das H-Gitter für die spaltfreie Konfiguration schrittweise in allen Raumrichtungen verfeinert. Die wandnächste Zelle hat im gesamten Rechengebiet eine maximale Ausdehnung von $y^+ \leq 1$, wodurch sichergestellt wird, dass bei ω -basierten Turbulenzmodellen keine Wandfunktion verwendet wird (siehe Kapitel 2.3.3).

Weiterhin wurde aus Gründen der Vergleichbarkeit darauf geachtet, dass für die spaltfreie und für die spaltbehaftete Rechnung dieselbe räumliche Auflösung verwendet wird. Da für die spaltbehaftete Simulation zwischen den mit B und b gekennzeichneten Blöcken (siehe Abb. 2.16 - mittig) eine Verfeinerung zur Auflösung der Spaltströmung nötig ist, setzt sich diese in den Kanal fort. Selbige Verfeinerung wurde in der spaltfreien Konfiguration erhalten. Für die Konfiguration mit 0.2 mm Spaltweite wurde die Domain entsprechend erweitert und weitere Zellen eingefügt.

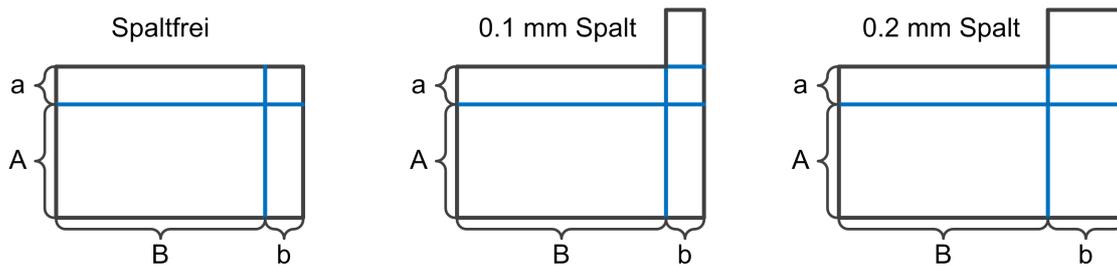


Abbildung 2.16: Verteilung der Blöcke über den Querschnitt (nicht maßstabsgetreu)
Die Domainengrenzen sind schwarz dargestellt, Blockgrenzen sind blau dargestellt.

Exemplarisch für die Vorgehensweise werden im Folgenden fünf Gitter für die spaltfreie Konfiguration vorgestellt. Die Zellanzahl in axialer Richtung für die Abschnitte D bis G (siehe Tab. 2.1) und die Anzahl der Zellen in den Blöcken A, a, B und b (siehe Abb. 2.16) ist der Tab. 2.2 zu entnehmen. Dabei stellt Gitter 1 das größte Gitter dar. Für Gitter 2 wurde die Zellanzahl in den Blöcken A, a, B und b erhöht. Gitter 3 wurde wiederum in axialer Richtung verfeinert (das Stoßsystem befindet sich in Abschnitt E-F). Das Gitter mit der maximalen Auflösung ist Gitter 4. Hier ist anzumerken, dass auf die Verfeinerung zwischen den Blöcken B und b verzichtet wurde, um den damit verbundenen numerischen Fehler zu quantifizieren. Variante 5 stellt das Gitter für alle weiteren Simulationen dar.

Tabelle 2.2: Zellanzahl in axialer Richtung für die Abschnitte D-G (siehe Tab. 2.1)
und die Anzahl der Zellen in den Blöcken A, a, B und b (siehe Abb. 2.16)

Gitter	D-E	E-F	F-G	A	a	B	b	Zellanzahl
1:	70	125	60	15	12	15	12	$2.6 \cdot 10^5$
2:	70	125	80	45	15	44	30	$1.9 \cdot 10^6$
3:	380	600	80	45	15	44	30	$5.2 \cdot 10^6$
4:	340	1200	160	70	15	70	15	$1.2 \cdot 10^7$
5:	150	700	60	45	15	44	30	$4.6 \cdot 10^6$

Die Gitterkonvergenz wird anhand von zwei Kriterien beurteilt:

Ein Kriterium stellt der Druckverlauf entlang der oberen Kanalwand auf Symmetrieebene dar. Dieser ist in Abb. 2.17 für den Ausschnitt A gezeigt. Im Überschallbereich der ersten Düse stimmen die Ergebnisse aller fünf Gitter sehr gut überein. Lediglich für die Stoßposition sind leichte Unterschiede erkennbar. Das Gitter 1 sagt die späteste Stoßposition vorher, wohingegen Gitter 2, 3 und 5 identische Stoßpositionen vorhersagen. Die Stoßposition von Gitter 4 liegt zwischen beiden Ergebnissen. Der Grund für den stromab verschobenen Stoß liegt nicht in der höheren Auflösung, sondern ist, wie zuvor beschrieben, auf die homogen zunehmende Zellgröße an der Seitenwand zurückzuführen. Allgemein zeigt sich jedoch, dass der Druckverlauf unempfindlich gegenüber der räumlichen Diskretisierung ist. Selbst das Gitter mit der niedrigsten Auflösung reicht aus, um den Druckverlauf gut vorherzusagen. Die maximale Abweichung in der Stoßposition beträgt nur 2.1 mm. Dies ist vor allem hinsichtlich der schnellen Überprüfung experimenteller Daten von großem Nutzen. Auf diese Weise können beispielsweise Leckagemassenströme oder Abweichungen von der geplanten Geometrie ohne hohen Rechenaufwand identifiziert werden.

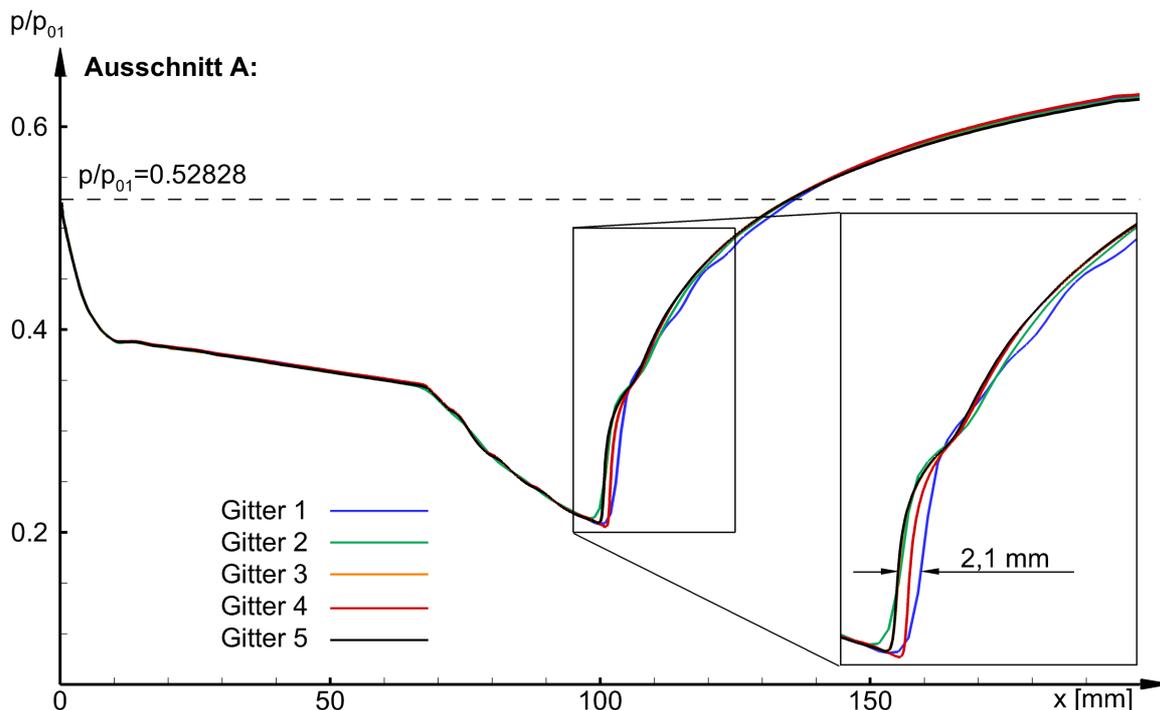


Abbildung 2.17: Dimensionsloser Wanddruckverlauf für fünf verschiedene Gitterauflösungen. Die Ruhebedingungen am Einlass sind $p_{01}=6 \text{ bar}$ und $T_{01}=300 \text{ K}$. Der statische Druck am Auslass beträgt $p=4.8 \text{ bar}$, das Ruhedruckverhältnis beträgt $p_{02}/p_{01}=0.7$. Die Wandtemperatur T_W ist durch Gleichung 2.12 vorgegeben.

Das zweite Kriterium stellt die Form des Pseudo-Stoßsystems dar.

In Abb. 2.18 ist die lokale Machzahl auf der Symmetrieebene für die fünf Gitter dargestellt. Machzahl $M=1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Die Gitterauflösung ist vergrößert in den Ausschnitten rechts dargestellt. Mit zunehmender Auflösung ändert sich die innere Struktur deutlich. Gitter 1 und Gitter 2 zeigen ein zusammenhängendes Überschallgebiet, wohingegen Gitter 3-6 klar voneinander getrennte Überschallgebiete vorhersagen. Des Weiteren ist der durch die Ablösung induzierte schräge Verdichtungsstoß deutlich zu erkennen. Auf der Achse bildet sich eine Machreflexion.

Während die Zellen für Gitter 1-3 in axialer Richtung äquidistant verteilt sind, wurden sie bei Gitter 5 lokal verfeinert. Das Ergebnis stimmt trotz stark reduzierter Zellanzahl sehr gut mit Gitter 4 überein und wird daher für alle weiteren Simulationen verwendet.

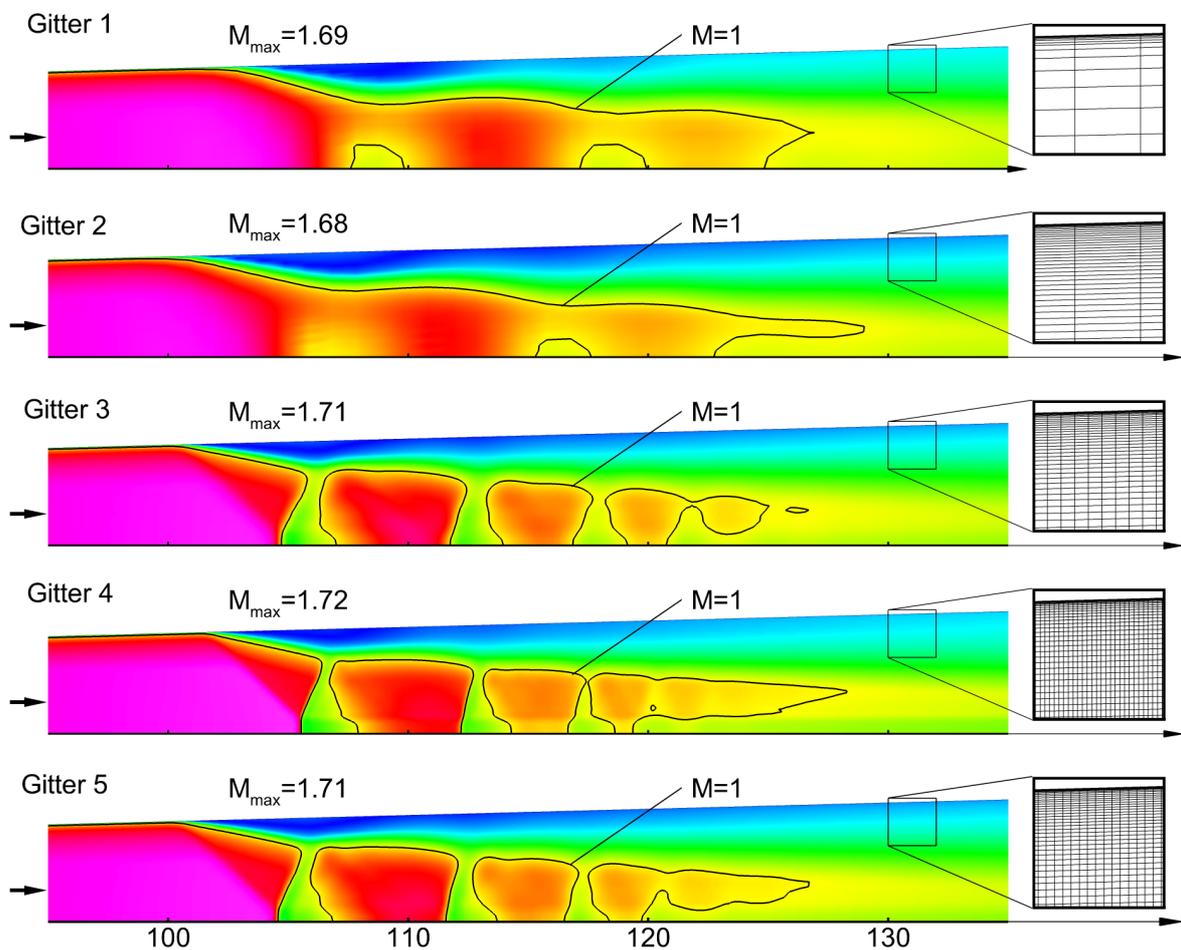


Abbildung 2.18: Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene ($z=0$) im Pseudo-Stoßsystem für fünf verschiedene Gitterauflösungen

Die Strömungsrichtung ist von links nach rechts. Machzahl $M=1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Die Gitterauflösung ist für den jeweiligen Ausschnitt dargestellt. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

2.3.3 Untersuchung der in CFX implementierten Turbulenzmodelle

Im folgenden Kapitel wird der Einfluss der Turbulenzmodellierung betrachtet. Untersucht werden die fünf gängigsten Wirbelviskositäts-Modelle und sechs Reynolds-Spannungs-Modelle. Da viele verschiedene Versionen der einzelnen Modelle bestehen und diese stetig weiter entwickelt werden, sei darauf hingewiesen, dass es sich hier ausschließlich um die in Ansys CFX implementierten Modelle unter Verwendung der empfohlenen Standardeinstellungen handelt (siehe [10]).

In diesem Kapitel soll aufgezeigt werden, dass die Simulation turbulenter Strömungen immer noch eine große Herausforderung darstellt. RANS-Modelle ermöglichen einerseits die Simulation komplexer Strömungen, führen aber andererseits aufgrund des hohen Modellierungsgrades und der teils grundsätzlich unterschiedlichen Modellierungsansätze zu stark voneinander abweichenden Ergebnissen. Die Wahl des am Besten geeigneten Turbulenzmodells hängt stark von dem vorliegenden Problem ab und der Nutzer ist stets gezwungen, seine Ergebnisse auf Plausibilität zu überprüfen.

Gegenüber RANS-Modellen, welche nur das statistische Mittel turbulenter Fluktuationen berechnen, werden diese (mit Ausnahme der kleinsten Skalen) von Large Eddy Simulationen (LES) räumlich und zeitlich aufgelöst. Damit einhergehend steigt die Ergebnisqualität aber auch der Rechenaufwand stark an, weshalb die Simulation vieler technisch relevanter Strömungen noch nicht oder nur durch den Einsatz von Großrechnern möglich ist.

Wirbelviskositäts-Modelle

In Abb. 2.19 ist die Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene ($z=0$) im Pseudo-Stoßsystem für die fünf Wirbel-Viskositätsmodelle dargestellt. Zur besseren Visualisierung wurden die Daten gespiegelt, um das ganze Pseudo-Stoßsystem darzustellen. Die Strömungsrichtung ist von links nach rechts, Machzahl $M = 1$ ist durch eine schwarze Linie gekennzeichnet. Die dazugehörige dimensionslose Druckverteilung entlang der Symmetrieebene an der oberen Kanalwand sowie die dazugehörigen Messpunkte für die spaltfreie Konfiguration sind in Abb. 2.20 dargestellt.

Das erste hier untersuchte Modell wurde von SPALART und ALLMARAS [128] entwickelt. Es gehört zur Klasse der Eingleichungsmodelle bzw. zur Klasse der Wirbelviskositäts-Transportmodelle. Bei $x = 90 \text{ mm}$ ist ein erster schwacher Stoß zu erkennen, der auf der Symmetrieebene nahezu senkrecht verläuft, aber nicht in den Unterschall führt. Die Vorstoßmachzahl beträgt $M = 1.55$. Anschließend erfolgt eine Re-Expansion der Strömung bis bei $x = 103 \text{ mm}$ ein weiterer Stoß zu erkennen ist. Dieser Vorgang wiederholt sich mehrmals, sodass sich ein unphysikalisch langes Pseudo-Stoßsystem ohne klar getrennte Unterschall- und Überschallgebiete ausbildet. Der dazu gehörige Druckverlauf in Abb.

2.20 (grüne Linie) belegt, dass die Stoßposition gegenüber dem Experiment zu weit stromauf vorhergesagt wird und die Rekompensation der Strömung zu langsam erfolgt. Erst bei $x \approx 300 \text{ mm}$ nähert sich der Druckverlauf den experimentellen Daten wieder an.

Das zweite hier untersuchte Wirbelviskositäts-Modell ist das **k- ε -Modell** nach JONES und LAUNDER [70]. Es werden je eine Erhaltungsgleichung für die turbulente kinetische Energie k und für die Dissipationsrate ε gelöst. Dem Modell wird eine hohe numerische Stabilität für wandferne Strömungen zugesprochen [10]. In der viskosen Unterschicht wandgebundener Strömungen erweist sich die ε -Transportgleichung jedoch als numerisch instabil, weshalb Dämpfungsfunktionen nötig sind [93]. Um dieses Problem zu umgehen, wird daher in Ansys CFX ein Wandmodell für alle ε -basierten RANS-Modelle verwendet. Nachteilig wirken sich Wandmodelle vor allem bei der Berechnung von Grenzschichten mit positiven Druckgradienten aus. In Abb. 2.19 b) ist zu sehen, dass sich ein deutliches Pseudo-Stoßsystem ausbildet. Die Strömung erreicht eine maximale Vorstoßmachzahl von $M = 1.70$. Bei $x = 100 \text{ mm}$ bilden sich an der oberen und unteren Kanalwand klar erkennbare schiefe Stöße aus, die in der Kanalmitte eine Machreflexion ausbilden. Die reflektierten Stöße führen ebenso wie die Machreflexion auf Unterschall. Anschließend erfolgt die Re-Expansion in den Überschall. Der Shocktrain setzt sich aus drei klar erkennbaren Stößen zusammen, gefolgt von einer kurzen Mischungszone. Der Druckverlauf (Abb. 2.20 - rote Linie) zeigt, dass die Stoßposition sehr gut wiedergegeben wird. Nach dem ersten Stoß tritt jedoch eine gedämpfte Schwingung im axialen Druckverlauf auf. Diese ist nicht numerisch bedingt, sondern wird durch die nachfolgenden Überschallgebiete hervorgerufen. Im Experiment konnte diese Schwingung nicht festgestellt werden.

Eine deutliche Verbesserung gegenüber dem k- ε -Modell stellt das **k- ω -Modell** nach WILCOX [147] dar. Der Hauptvorteil besteht darin, dass für wandgebundene Strömungen keine Dämpfungsfunktion benötigt wird und stattdessen eine Dirichlet-Randbedingung für die turbulente Wirbelfrequenz ω verwendet werden kann [93]. Daher kann bei diesem Modell die viskose Unterschicht voll aufgelöst werden. Nachteilig ist, dass sich dieses Modell bei freien Strömungen jedoch weniger robust verhält. Trotz der Vorteile, die vor allem bei Kanalströmungen zur Geltung kommen, ist gegenüber dem k- ε -Modell keine signifikante Änderung festzustellen (siehe Abb. 2.19 c). Das Stoßsystem bildet sich etwas weiter stromab, weshalb die maximale Vorstoßmachzahl minimal höher ist. Rezirkulationsgebiete an der oberen und unteren Kanalwand haben zur Folge, dass die schiefen Verdichtungsstöße geringfügig steiler und die Machreflexion in der Kanalmitte entsprechend kleiner ausfällt. Weiterhin werden die nachfolgenden Überschallgebiete dadurch etwas weiter zur Kanalmitte gebeugt, weshalb die Überschwinger im Druckverlauf nicht

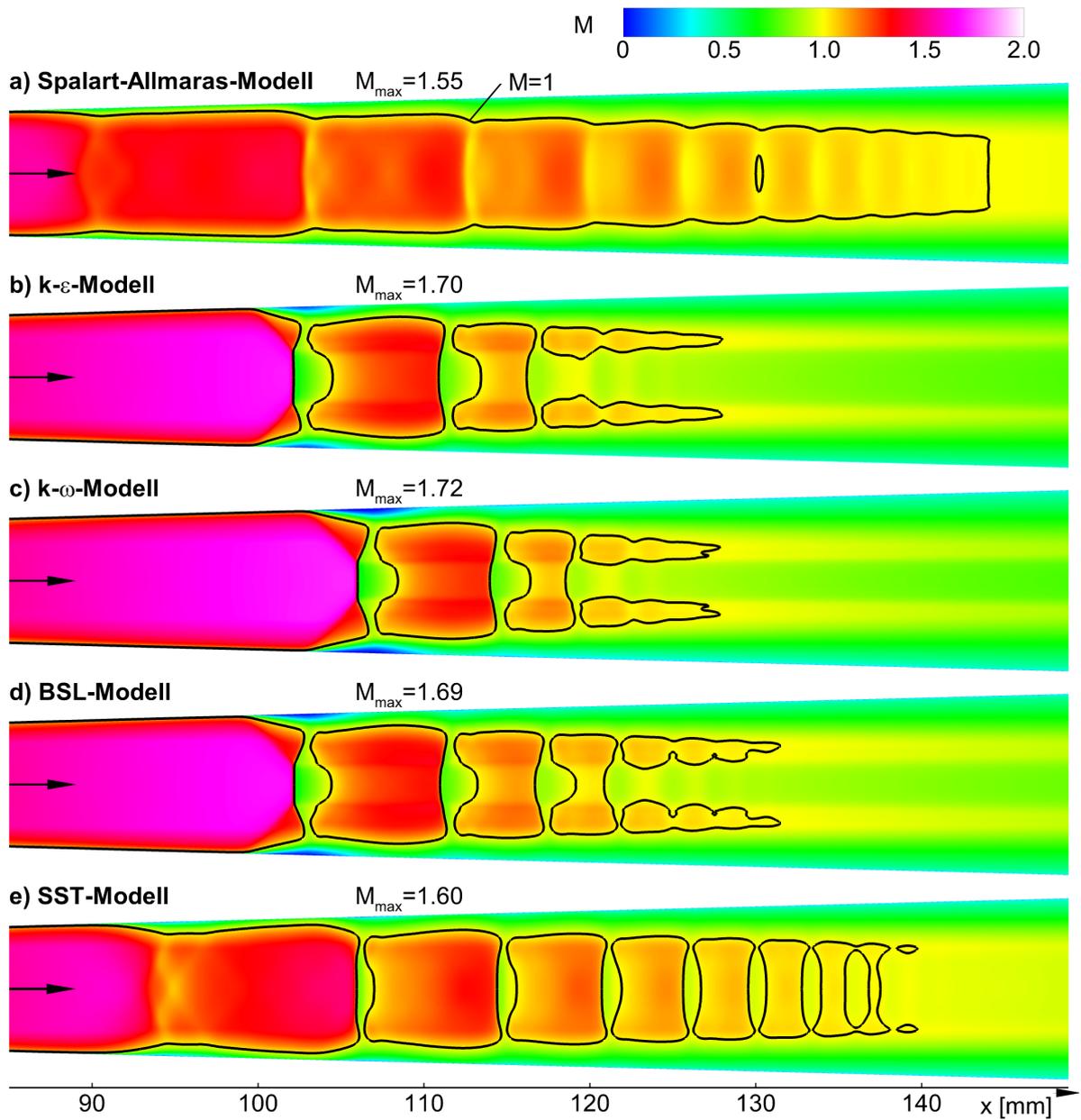


Abbildung 2.19: Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene ($z=0$) im Pseudo-Stoßsystem für fünf verschiedene Wirbelviskositäts-Modelle
 Strömungsrichtung ist von links nach rechts. Machzahl $M=1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

mehr wiedergegeben werden (siehe Abb. 2.20 - blaue Linie).

Das **BSL-Modell** und das **SST-Modell** von MENTER [93] stellen zwei neue Ansätze dar, die die Vorteile der beiden vorangegangenen Modelle vereinen sollen. Die Modelle blenden mit zunehmendem Wandabstand vom $k-\omega$ -Modell über zum $k-\varepsilon$ -Modell. Zu diesem Zweck wurde das $k-\varepsilon$ -Modell so umformuliert, dass es auch ω als Erhaltungsgröße verwendet. Das SST-Modell beinhaltet gegenüber dem BSL-Modell einen zusätzlichen Limiter für die turbulente Viskosität. Wie Abbildung 2.19 d) und e) zeigen, unterscheiden sich die beiden Modelle in dem hier vorgestellten Fall massiv. Das BSL-Modell weist dieselbe Stoßposition und anfängliche Stoßstruktur wie das $k-\varepsilon$ -Modell auf. Es bildet sich jedoch ein weiterer Stoß und der anschließende Druckrückgewinn weicht deutlich von den beiden vorangegangenen Turbulenzmodellen sowie vom Experiment ab. Noch schlechter ist das Ergebnis unter Verwendung des SST-Modells. Ähnlich wie das Spalart-Allmaras Modell setzt der erste Stoß viel zu früh ein. Im Druckverlauf sind deutliche Oszillationen zu erkennen und es bildet sich ein unphysikalisch langes Pseudo-Stoßsystem mit vielen senkrechten Stößen.

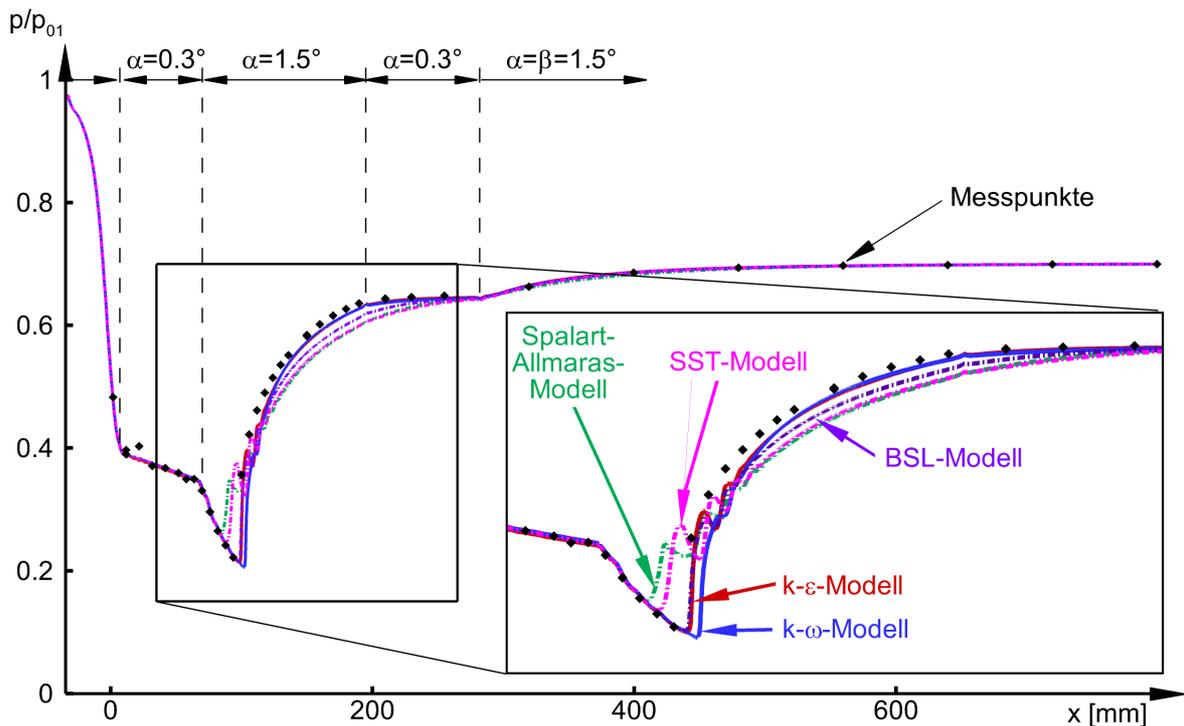


Abbildung 2.20: Dimensionsloser Druckverlauf entlang der oberen Kanalwand für fünf verschiedene Wirbelviskositäts-Modelle und das spaltfreie Experiment (Basistestfall)
Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Reynolds-Spannungs-Modelle

Im Gegensatz zu den Wirbelviskositäts-Modellen lösen die Reynolds-Spannungs-Modelle sechs Erhaltungsgleichungen zur Beschreibung des Reynolds-Spannungs-Tensors. Da in diesen die turbulente Dissipation ε bzw. die turbulente Wirbelfrequenz ω auftritt, wird hierfür eine siebte Erhaltungsgleichung gelöst. Der Rechenaufwand gegenüber den Wirbelviskositäts-Modellen ist entsprechend höher. Weiterhin leidet die Robustheit enorm. Daher wurden diese Modelle in Ansys CFX leicht modifiziert: statt eines anisotropen Diffusionskoeffizienten wird unter Verwendung der Standardeinstellungen ein isotroper Diffusionskoeffizient für die Erhaltung der Reynolds-Spannungen gelöst (siehe [10]).

Die ersten drei Modelle basieren auf der turbulenten Dissipation ε . Die Erhaltungsgleichung ist ähnlich aufgebaut wie im Falle des k - ε -Modells. An Wänden sind daher theoretisch ebenso Dämpfungsfunktionen nötig, weshalb die Modelle in Ansys CFX ein Wandmodell verwenden. Das **LRR-IP-Reynolds-Spannungs-Modell** und das **LRR-QI-Reynolds-Spannungs-Modell** entstammen der Arbeit von LAUNDER, REECE und RODI [85]. Beide Modelle verwenden eine lineare Gleichung zur Berechnung der Druck-Scher-Korrelation. Sie unterscheiden sich lediglich in der Berechnung des schnellen Druck-Scher-Terms (IP = Isotropization of Production, QI = Quasi-Isotropic). Die Unterschiede im Ergebnis fallen entsprechend gering aus. Abbildung 2.21 zeigt die Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene ($z=0$) im Pseudo-Stoßsystem für die sechs Reynolds-Spannungs-Modelle. Das LRR-IP-Modell sagt den ersten schiefen Stoß bei $x = 94 \text{ mm}$ vorher, wohingegen der Beginn des Pseudo-Stoßsystems für das LRR-QI-Modell 2 mm weiter stromab verschoben ist. Ein deutlich sichtbarer Unterschied ist in den nachfolgenden Überschallgebieten ersichtlich. Die Verluste über die Machreflexion fallen bei dem LRR-QI-Modell aufgrund der etwas höheren Vorstoßmachzahl stärker aus, weswegen sich anschließend eine deutlich erkennbare Scherschicht ausbildet, die bis zum Ende des Shocktrains erhalten bleibt. Beide Modelle weisen keine Rezirkulationsgebiete auf der dargestellten Symmetrieebene auf. Entsprechend reichen die nachfolgenden Überschallgebiete nahe an die Kanalwand heran, aus welchem Grund auch hier Schwankungen im Druckverlauf vorhergesagt werden (siehe Abb. 2.22). Der Druckrückgewinn erfolgt sehr viel langsamer als im Experiment.

Das **SSG-Reynolds-Spannungs-Modell** nach SPEZIALE, SARKAR und GATSKI [129] stellt den komplexesten Ansatz unter den ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modellen dar. Hier wird eine quadratische Gleichung für die Druck-Scher-Korrelation gelöst. Der erste schiefe Stoß wird bei $x = 92 \text{ mm}$ vorhergesagt. Die nachfolgenden Überschallgebiete sind in axialer Richtung etwas weiter ausgedehnt und ein zusätzlicher Stoß tritt auf, sodass die Gesamtlänge zunimmt. Der Druckrückgewinn erfolgt noch langsamer als für die beiden vorangegangenen Modelle.

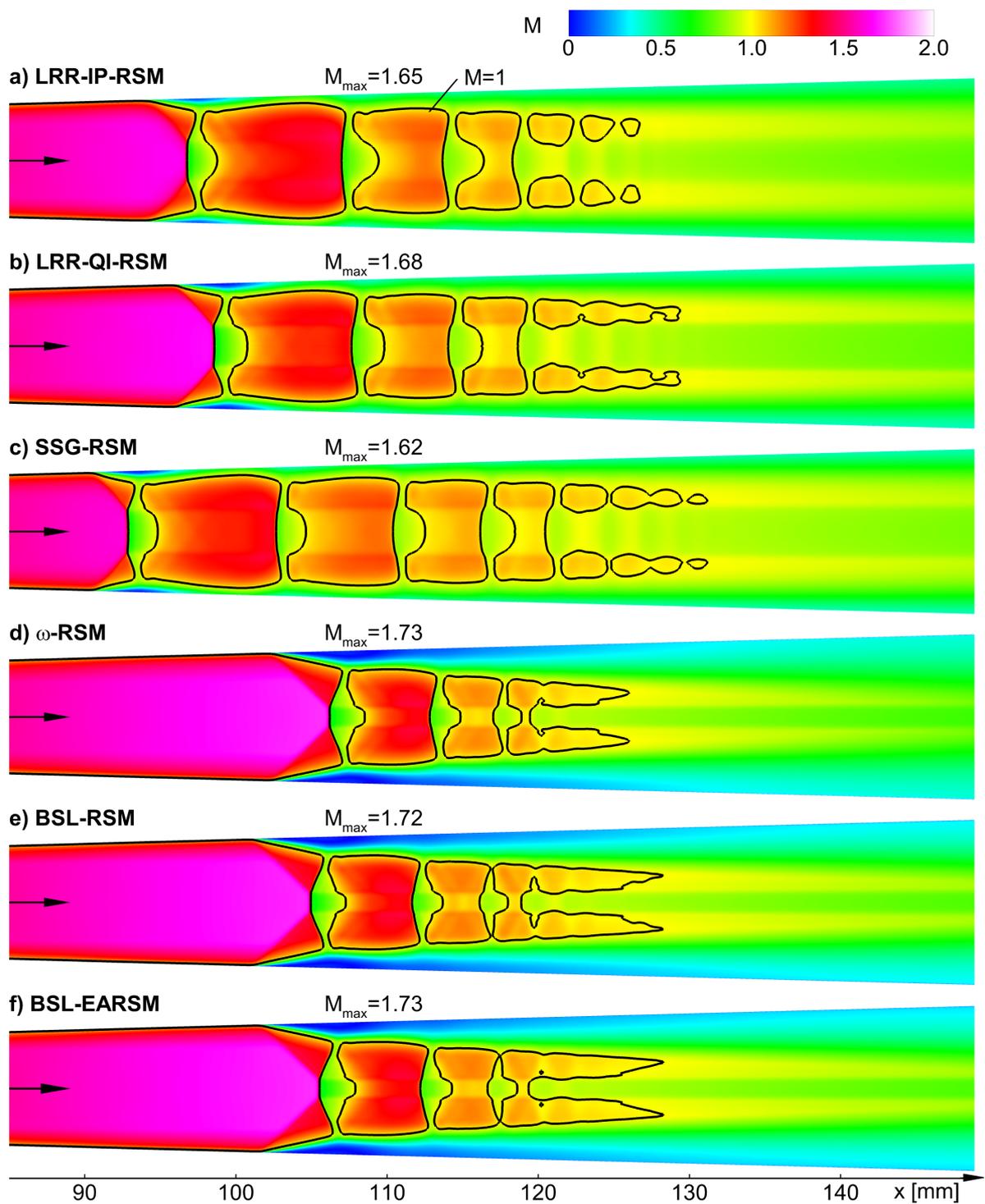


Abbildung 2.21: Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene ($z=0$) im Pseudo-Stoßsystem für sechs verschiedene Reynolds-Spannungs-Modelle
 Strömungsrichtung ist von links nach rechts. Machzahl $M=1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

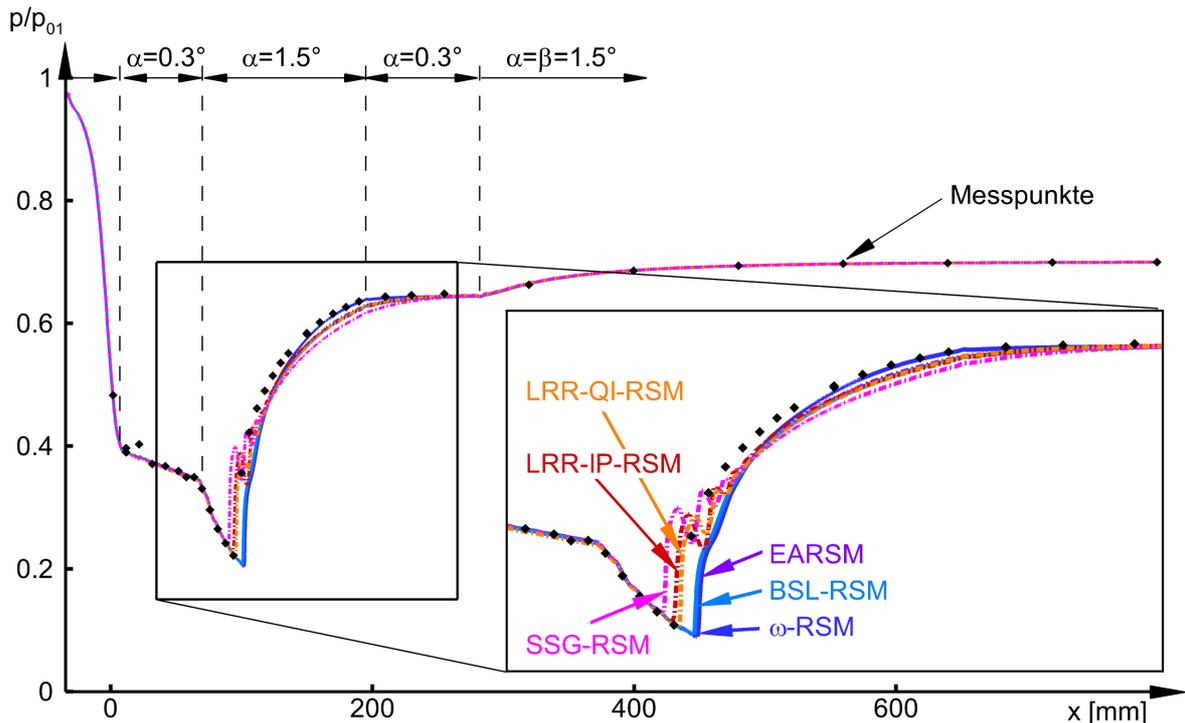


Abbildung 2.22: Dimensionsloser Druckverlauf entlang der oberen Kanalwand für sechs verschiedene Reynolds-Spannungs-Modelle und das spaltfreie Experiment (Basistestfall)
Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Zu den ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modellen zählen das **ω -Reynolds-Spannungs-Modell**, welches auf der Arbeit von WILCOX [148] beruht, und das **BSL-Reynolds-Spannungs-Modell**. Der Vorteil dieser Modelle liegt, ähnlich wie bei dem Standard k - ω -Modell, in der besseren Beschreibung wandgebundener Strömungen. Da das ω -Reynolds-Spannungs-Modell dieselben Stabilitätsprobleme wie das Standard k - ω -Modell für freie Strömungen aufweist, blendet das BSL Reynolds-Spannungs-Modell analog wie das BSL-Modell mit zunehmendem Wandabstand zu einer ε -basierten Formulierung über.

Das Explizit Algebraische Reynolds-Spannungs-Modell (**EARSM**) von WALLIN und JOHANSSON [141] stellt, wie der Name schon impliziert, ein algebraisches Reynolds-Spannungs-Modell dar. Zur Berechnung des Reynolds-Spannungs-Tensors werden nur die kinetische Energie k sowie die Dissipationsrate ε benötigt. Um die bereits erwähnten Probleme der ε -Formulierung in Wandnähe zu umgehen, wurde auch hier seitens Ansys CFX eine ω -Formulierung mit Blending-Funktion implementiert (**BSL-EARSM**).

Die Modelle zeigen, trotz teils deutlich unterschiedlicher Formulierung, sehr ähnliche Ergebnisse (siehe Abb. 2.21 d-e). Die Stoßposition ist in allen drei Fällen bei $x = 102 \text{ mm}$. Die maximale Vorstoßmachzahl beträgt $M = 1.72 - 1.73$. Alle Modelle sagen an Ober-

und Unterseite ausgeprägte Rezirkulationsgebiete vorher, die den nachfolgenden Shocktrain zur Kanalmitte drücken. Konsequenterweise sind im Druckverlauf keine Schwingungen zu erkennen (siehe Abb. 2.22). Die Überschallgebiete des Shocktrains sind bedeutend kürzer als bei allen anderen Modellen und der Druckrückgewinn erfolgt schneller.

3-D Struktur der Pseudo-Stoßsysteme für verschiedene Turbulenzmodelle

Ein Blick auf die 3-D Struktur der Pseudo-Stoßsysteme offenbart weitere signifikante Unterschiede zwischen den einzelnen Modellen. Die Abbildungen 2.23 bis 2.33 zeigen jeweils denselben Ausschnitt des Pseudo-Stoßsystems für die angewendeten Turbulenzmodelle. Zur besseren Visualisierung wurden auch hier die Daten gespiegelt, um den vollen Kanal darzustellen. Die gelbe Iso-Fläche entspricht Machzahl $M = 1$, die blauen Flächen zeigen Rezirkulationsgebiete und entsprechen einer axialen Geschwindigkeit $u = -10^{-3} \text{ m/s}$. Um auch die innere Struktur des Pseudo-Stoßsystems zu zeigen, ist ein Viertel des Überschallteils ausgeschnitten und die lokale Machzahl auf der Schnittfläche dargestellt. Der Konturplot in der oberen rechten Ecke zeigt die vertikale Geschwindig-

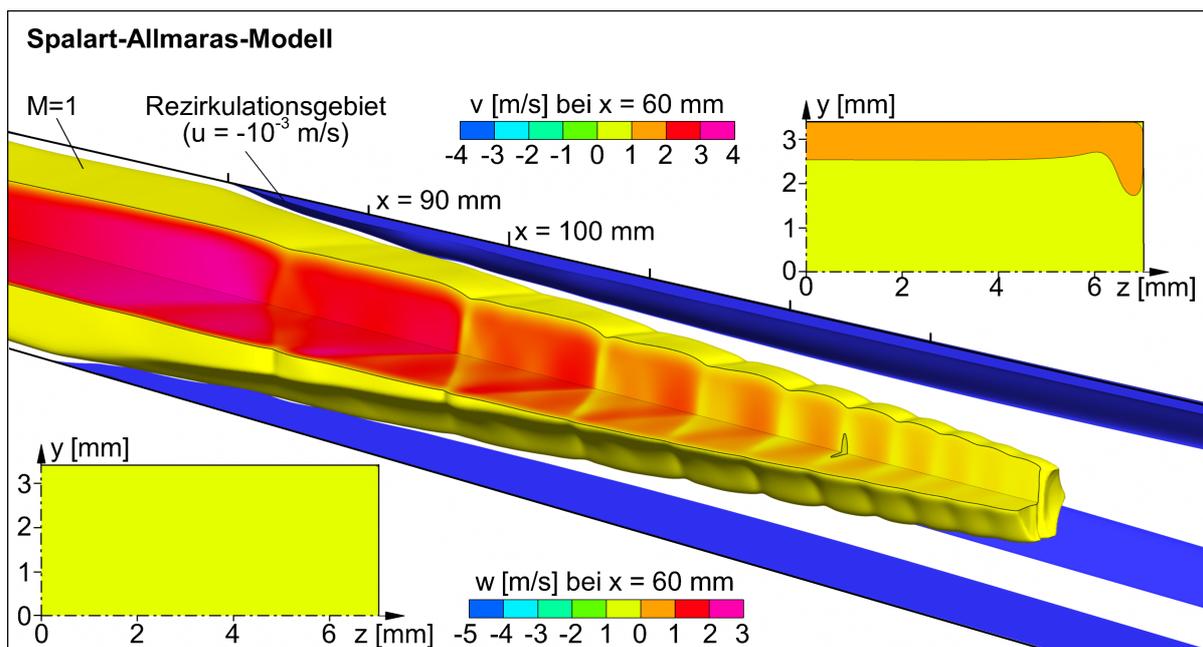


Abbildung 2.23: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des Spalart-Allmaras Modells: Die gelbe Iso-Fläche zeigt die Struktur des Überschallgebiets und entspricht Machzahl $M=1$. Die blaue Iso-Fläche zeigt Rückströmgebiete und entspricht einer axialen Geschwindigkeit $u=-10^{-3} \text{ m/s}$. Oben rechts ist die vertikale Geschwindigkeitskomponente v an der Stelle $x=60 \text{ mm}$ für ein Viertel des Kanals dargestellt. Unten links ist die Geschwindigkeitskomponente w für dieselbe axiale Position wiedergegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

keitskomponente v an der Stelle $x = 60 \text{ mm}$, der Konturplot in der unteren linken Ecke zeigt die Geschwindigkeitskomponente w in Kanaltiefe. Die axiale Position des Pseudo-Stoßsystems kann anhand der sechs Markierungen ($\Delta x = 10 \text{ mm}$) in der Kanalecke abgelesen werden. Im Folgenden wird kurz auf die Besonderheiten der einzelnen Modelle eingegangen.

Spalart-Allmaras Modell

Bei der 3-D Betrachtung des Spalart-Allmaras Modells (Abb. 2.23) wird deutlich, dass das Pseudo-Stoßsystem durch eine in axialer Richtung weit ausgedehnte Eckenablösung induziert wird. Diese setzt bei $x \approx 80 \text{ mm}$ ein und ruft eine schwache Umlenkung der Strömung hervor. Die dadurch induzierten schiefen Stöße beginnen entsprechend in den Ecken und kreuzen sich bei $x \approx 90 \text{ mm}$ in der Kanalmitte. An den Rändern des Überschallgebiets werden diese als Expansionen reflektiert und bewirken die Re-Expansion der Strömung. Sowohl die Stöße als auch die reflektierten Expansionen legen somit in ihrer Ausbreitungsrichtung die maximal mögliche Weglänge im Kanal zurück, bis der nächste Stoß bei $x \approx 105 \text{ mm}$ erfolgt. Daher wird mit diesem Modell die maximale Distanz zwischen den einzelnen Stößen erreicht und der gesamte Shocktrain zu lang ausgebildet. Die massiven Eckenablösungen reduzieren weiterhin den effektiven Querschnitt und verhindern dadurch die Druckzunahme der Unterschallströmung. Sie erstrecken sich durch den gesamten Kanal, weshalb sich der statische Druck erst viel später stromab dem experimentell gemessenen Druck annähert.

Die Geschwindigkeitskomponenten v und w zeigen erwartungsgemäß keine Eckenwirbel. Lediglich die Divergenz der Düse spiegelt sich in der v -Komponente wieder.

k- ε -Modell und k- ω -Modell

Die Ergebnisse des k- ε -Modells (Abb. 2.24) und des k- ω -Modells (Abb. 2.25) sehen sich sehr ähnlich. Auch hier tritt eine Eckenablösung auf, jedoch erst bei $x \approx 95 \text{ mm}$ bzw. 98 mm . Diese sind viel dicker ausgeprägt und haben daher eine stärkere Umlenkung sowie stärker ausgeprägte Verdichtungsstöße zur Folge. Die Stöße verschneiden sich auf der Achse zu einer viereckigen Machdisk. Durch den höheren Ruhedruckverlust der aufeinanderfolgenden senkrechten Stoßanteile ist die Verzögerung der Strömung auf Unterschall in Nähe der Achse schneller abgeschlossen. Dadurch wird die Mischungszone sowohl durch eine äußere als auch durch eine innere Scherschicht verzögert. Der vertikale Schnitt zeigt, dass die einzelnen Überschallgebiete an der Seite miteinander verbunden sind. Der von der Machdisk kommende schiefe Stoß wird hier als Expansion reflektiert und ist vornehmlich für die Re-Expansion in den Überschallgebieten verantwortlich. Beide Modelle bilden ebenso wie das Spalart-Allmaras Modell keine Eckenwirbel aus. Der einzig markante Unterschied ist das Rezirkulationsgebiet an der oberen Kanalwand.

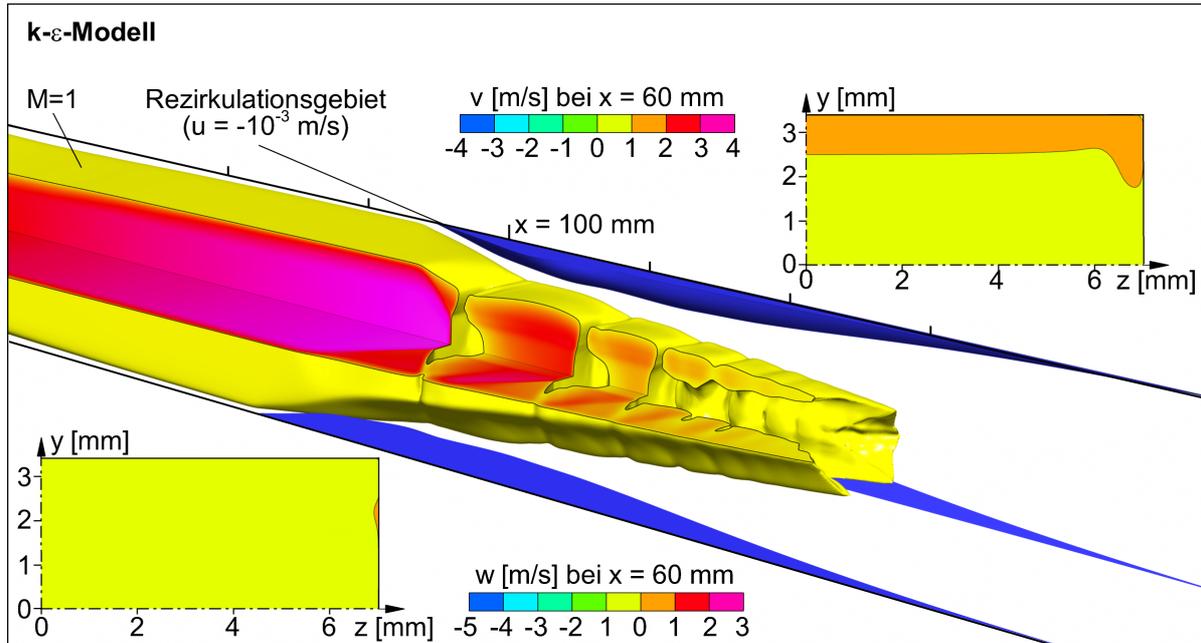


Abbildung 2.24: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des k- ϵ -Modells
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

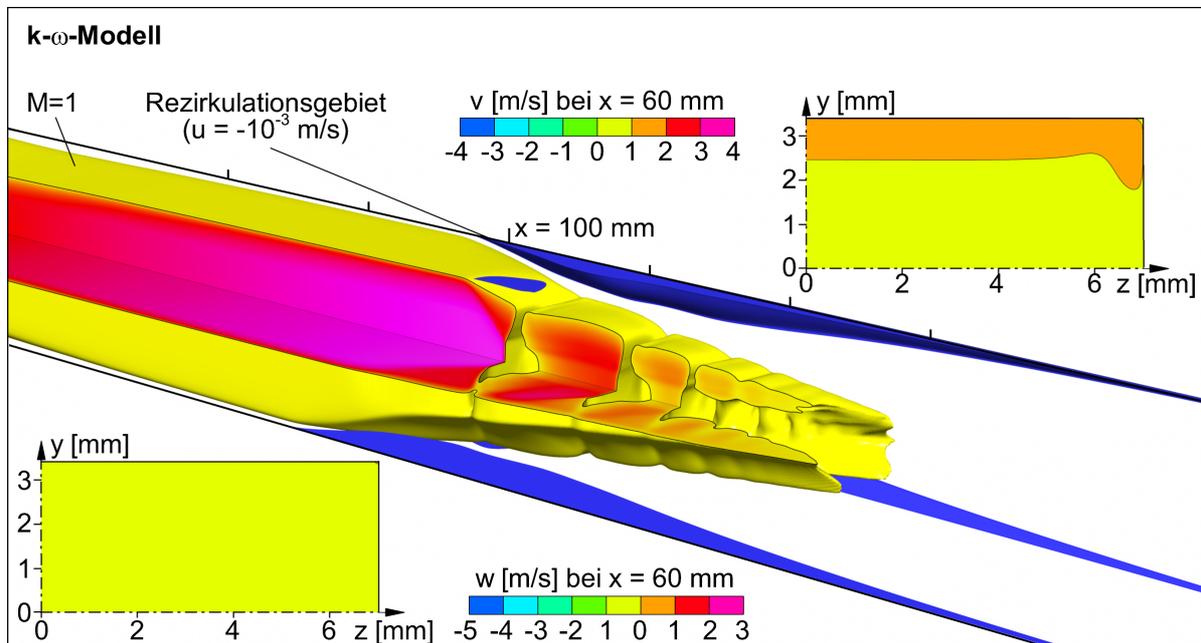


Abbildung 2.25: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des k- ω -Modells
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

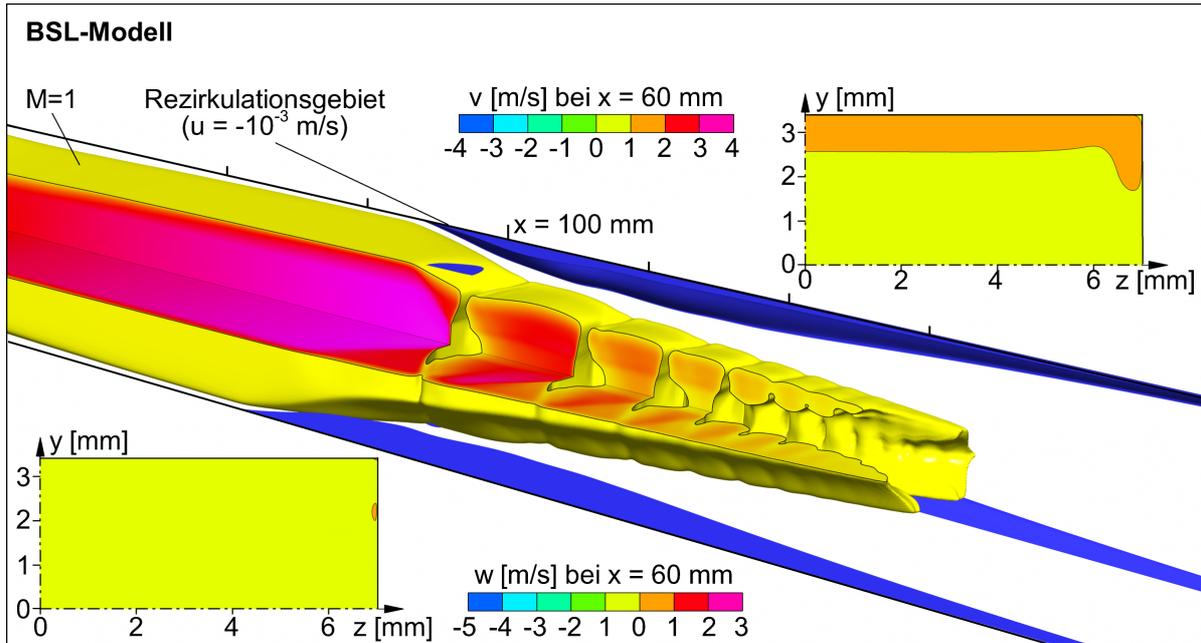


Abbildung 2.26: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des BSL-Modells
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

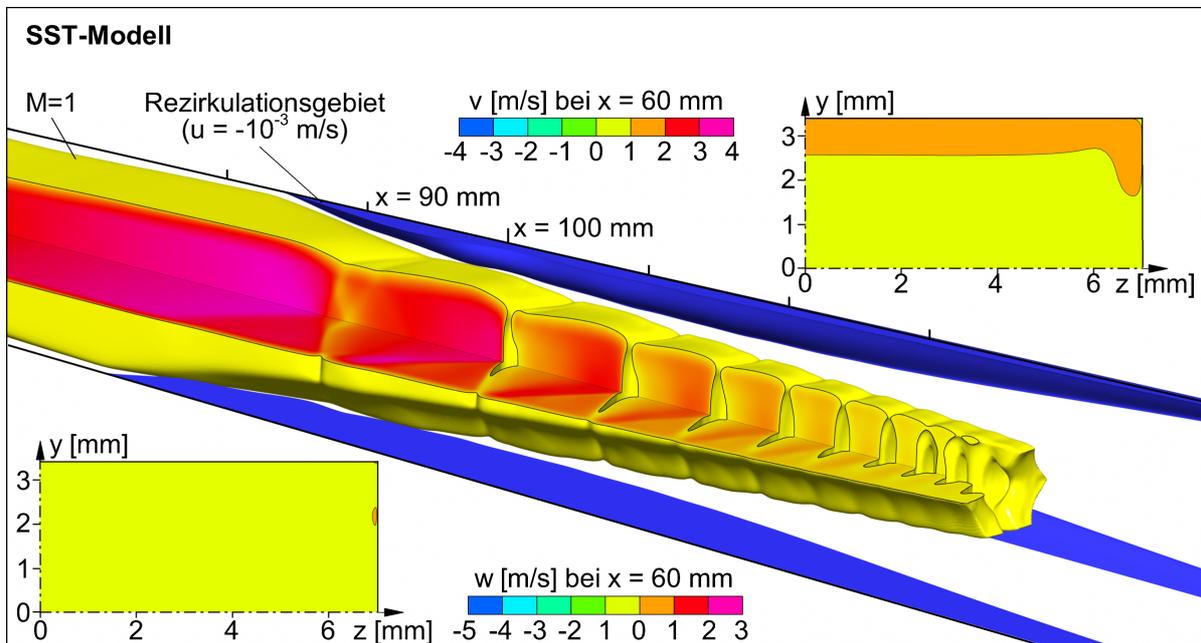


Abbildung 2.27: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des SST-Modells
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

BSL-Modell und SST-Modell

Das BSL-Modell (Abb. 2.26) bildet eine weniger ausgeprägte Eckenablösung sowie eine kleine Ablösung an der Kanalober- und Unterseite aus. Das gesamte Pseudo-Stoßsystem fällt, wie schon aus Abb. 2.19 hervorgeht, etwas länger aus. Die Mischungszone erstreckt sich aber über einen noch längeren Bereich als auf der Symmetrieebene ersichtlich.

Das SST-Modell (Abb. 2.27) zeigt keine Ähnlichkeit mehr mit dem k - ε -Modell bzw. dem k - ω -Modell. Die Eckenablösungen setzen bereits bei $x = 85 \text{ mm}$ ein, reichen bis $x \approx 200 \text{ mm}$ und rufen so ein langes Pseudo-Stoßsystem und einen verzögerten Druckrückgewinn ähnlich dem Spalart-Allmaras Modell hervor. Vor allem bei diesem Ergebnis ist ersichtlich, wie die an den Seiten einsetzenden Expansionen für die Beschleunigung der Strömung in den einzelnen Überschallsegmenten verantwortlich sind. Da die Machzahl an dieser Stelle $M \approx 1$ beträgt, greift der Fächer in einem 90° -Winkel über den gesamten Querschnitt ein.

ε -basierte Reynolds-Spannungs-Modelle

Der größte Nachteil der Wirbelviskositäts-Modelle liegt in der unzureichenden Beschreibung von rotierenden Strömungen, von Strömungen mit stark gekrümmten Stromlinien und der Vorhersage von Sekundärströmungen [148]. Zu Letzteren zählen beispielsweise Eckenwirbel, die, wie aus den vorangegangenen Ergebnissen ersichtlich, von keinem der Wirbelviskositäts-Modelle wiedergegeben wurden. Hinsichtlich der vorhergesagten Eckenablösung ist anzunehmen, dass Eckenwirbel einen signifikanten Einfluss auf den Ablösepunkt haben können. Wie jedoch der Abb. 2.28 zu entnehmen ist, werden diese trotz des sehr viel höheren Modellierungsaufwands auch von dem LRR-IP-Reynolds-Spannungs-Modell nicht wiedergegeben. Weder die v -Komponente noch die w -Komponente der Strömung zeigen ein unterschiedliches Verhalten im Vergleich zu den vorangegangenen Ergebnissen. Die gesamte Struktur des Pseudo-Stoßsystems unterscheidet sich von derjenigen für das eher einfache k - ε -Modell lediglich durch eine leicht stromauf verschobene Eckenablösung.

Im Gegensatz dazu bildet das LRR-QI-Reynolds-Spannungs-Modell zwei schwache Eckenwirbel aus (siehe Abb. 2.29). Diese führen augenscheinlich dazu, dass sich der Beginn der Eckenablösung um einige Millimeter stromab verschiebt. Die Umlenkung durch die Ablösung ist etwas stärker, weshalb das erste Überschallsegment in axialer Richtung kürzer ausgedehnt ist.

Das SSG-Reynolds-Spannungs-Modell hingegen zeigt trotz ähnlich stark ausgeprägter Eckenwirbel eine weiter stromauf verschobene Eckenablösung. Ein direkter Zusammenhang zwischen der Existenz von Eckenwirbeln und der Position des Ablösepunkts ist daher fraglich.

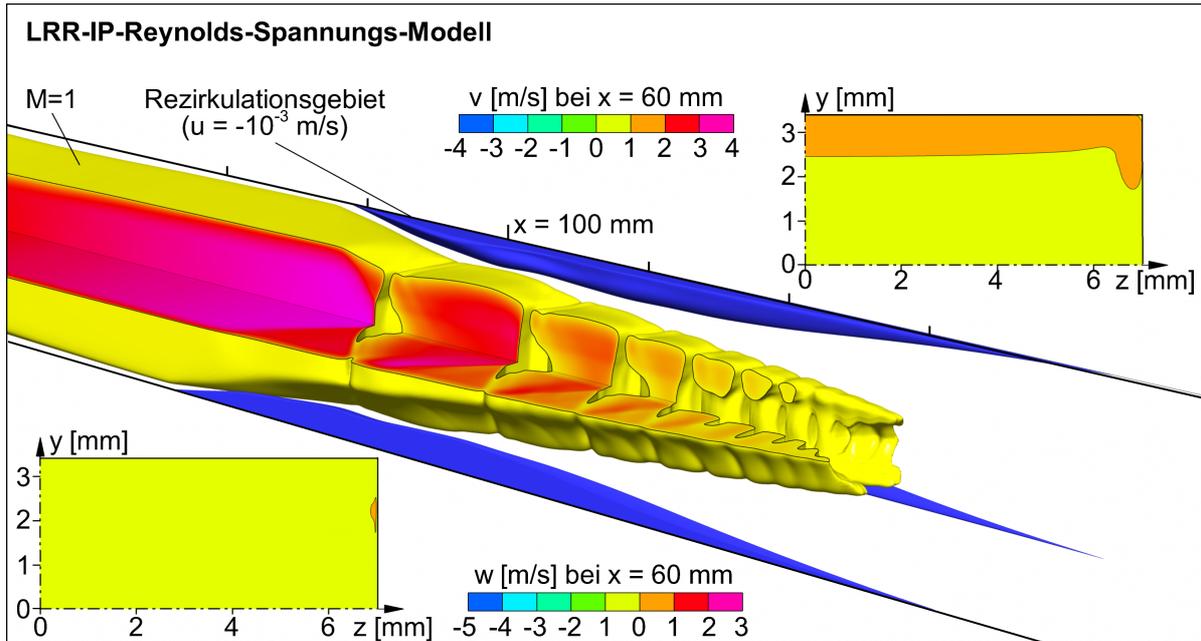


Abbildung 2.28: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des LRR-IP-RSM
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

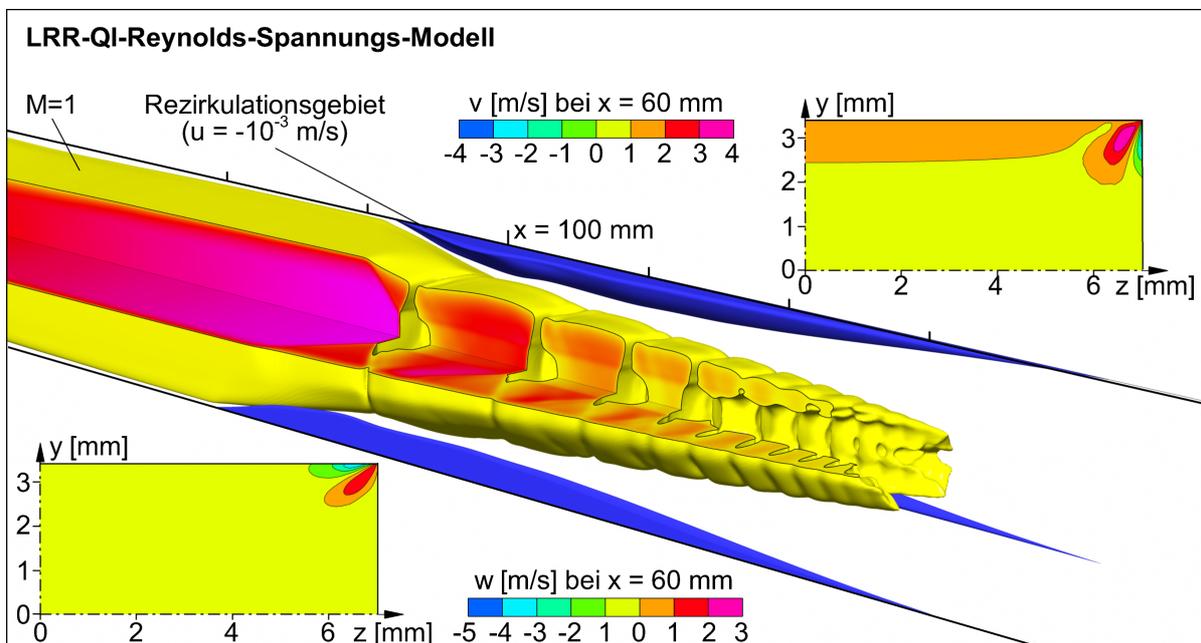


Abbildung 2.29: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des LRR-QI-RSM
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

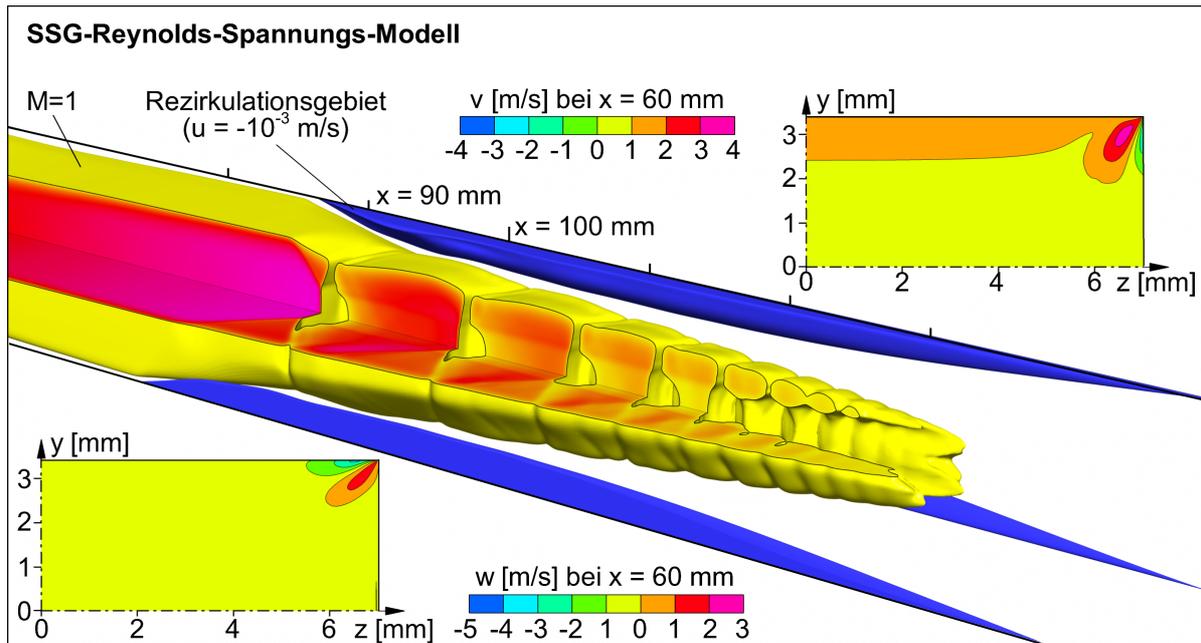


Abbildung 2.30: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des SSG-RSM
Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

ω -basierte Reynolds-Stress-Modelle

Das 3-D Erscheinungsbild der ω -basierten Reynolds-Stress-Modelle ist für alle drei Modelle sehr ähnlich, unterscheidet sich jedoch grundlegend von allen vorangegangenen Ergebnissen. Statt ausgeprägter Eckenablösungen tritt die Ablösung hier an allen vier Seitenwänden an derselben axialen Position auf. Dadurch ändert sich auch die Struktur des nachfolgenden Überschallgebiets. Die Scherschicht des Shocktrains wird von allen Kanalwänden gleichzeitig zur Kanalmitte umgelenkt, weshalb der Überschallbereich eine viereckige Form aufweist. Selbige Umlenkung ist für den fehlenden Fußabdruck des Shocktrains im Druckverlauf verantwortlich (siehe Abb. 2.22). Im Nachstoßbereich haben die fehlenden Eckenablösungen zur Folge, dass der Druckrückgewinn im Unterschallteil der Strömung sehr viel schneller erfolgt. Dies hat indirekt auch eine Verkürzung des gesamten Pseudo-Stoßsystems zur Folge, da sich die reflektierten Expansionen und Kompressionen innerhalb des Shocktrains nach dem Umgebungsdruck richten.

Ein weiterer signifikanter Unterschied sind die sehr viel stärker ausgeprägten Eckenwirbel. Vor allem die w -Komponente hat an Intensität stark zugenommen. Zudem reichen die Eckenwirbel viel näher an die Wand heran. Eine naheliegende Erklärung hierfür ist die vollständige Auflösung der Grenzschicht, da im Gegensatz zu den ε -basierten RANS-Modellen keine Wandfunktion verwendet wird.

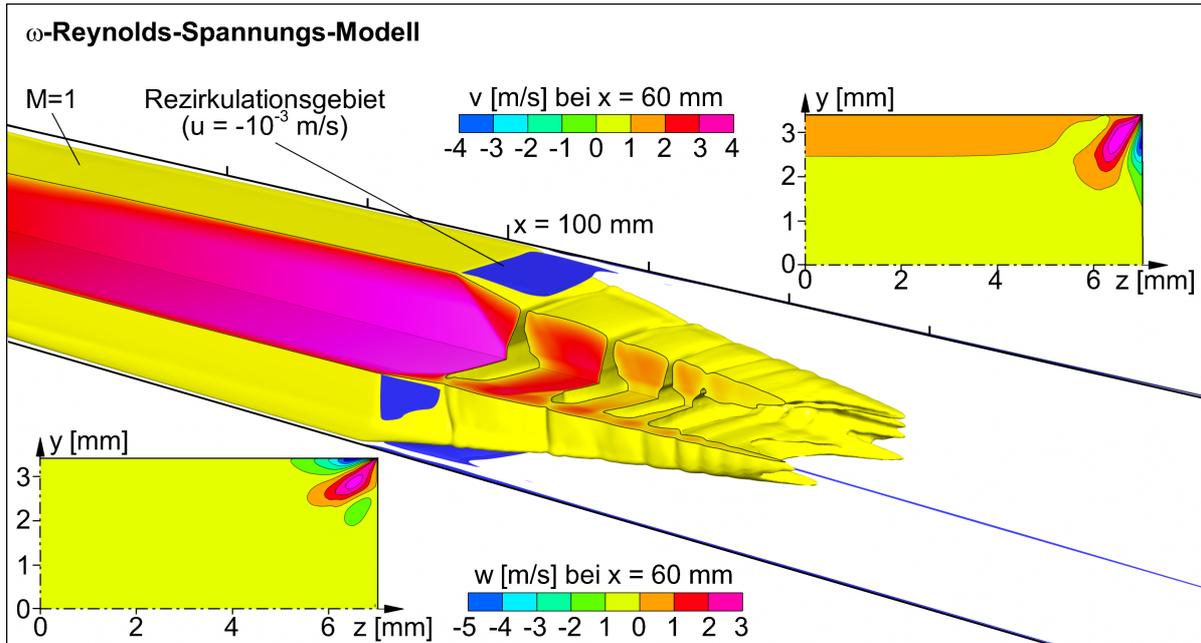


Abbildung 2.31: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des ω -RSM

Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

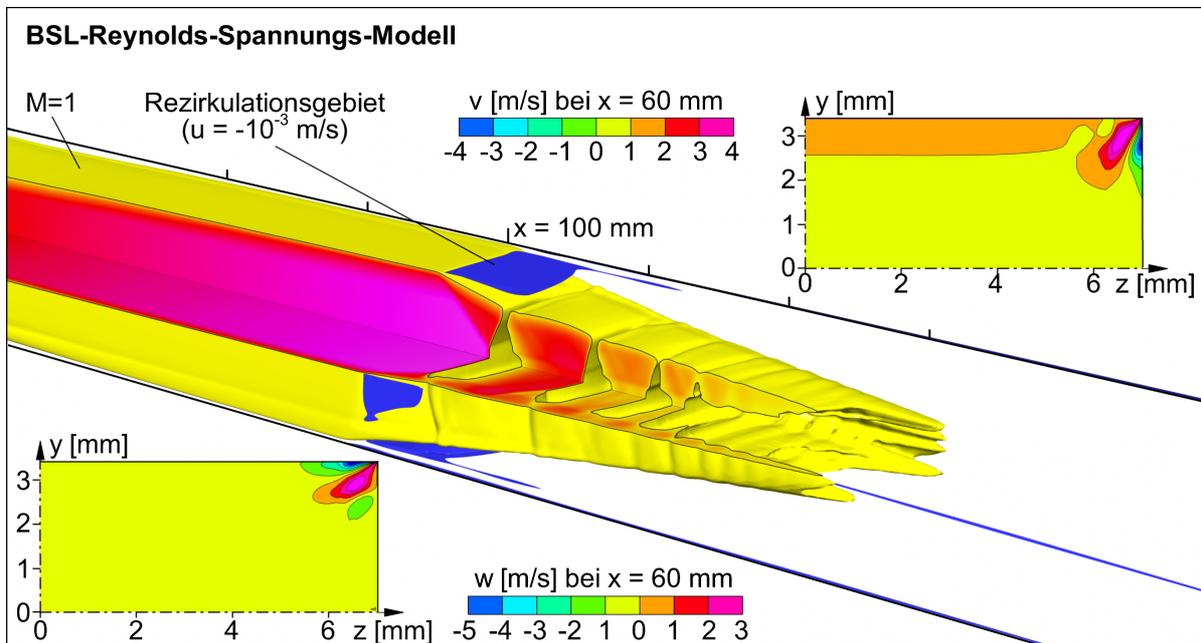


Abbildung 2.32: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des BSL-RSM

Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

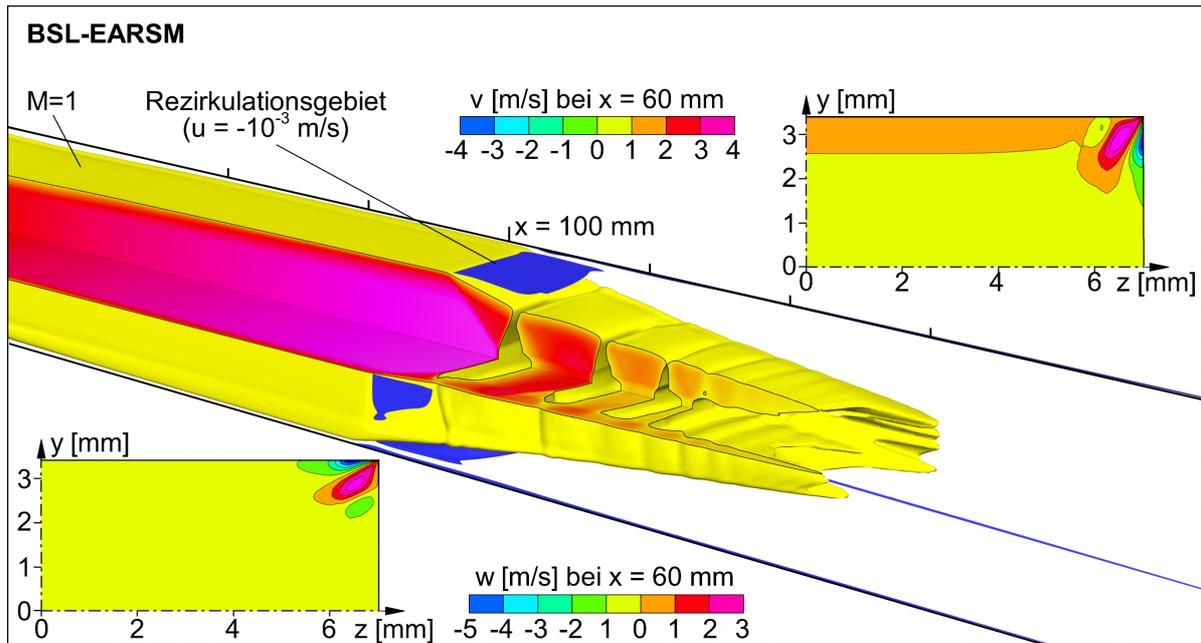


Abbildung 2.33: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems unter Verwendung des BSL-EARSM
 Eine ausführliche Bildbeschreibung ist in Abb. 2.23 gegeben. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

2.3.4 Bewertung der Turbulenzmodelle

Da die verschiedenen Turbulenzmodelle eine teils deutlich unterschiedliche 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems vorhersagen, ist eine ausführliche Validierung der Ergebnisse erforderlich. Anhand der Druckverläufe lassen sich die Modelle in drei Gruppen unterteilen:

1. Das Spalart-Allmaras Modell und das SST-Modell sagen im Vergleich zum Experiment ein zu langes Pseudo-Stoßsystem vorher. Weiterhin stimmen weder Stoßposition noch der Druckverlauf nach dem Stoßsystem mit dem Experiment überein.
2. Das $k-\varepsilon$ -Modell, das BSL-Modell und die ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle sagen die korrekte oder eine leicht stromauf verschobene Stoßposition vorher. Die nachfolgenden Überschallgebiete sind sowohl in axialer als auch vertikaler Richtung ausgedehnt. Die vertikale Ausdehnung zeigt sich auch in Form von Schwingungen im axialen Wanddruckverlauf des Shocktrains.
3. Die Stoßposition des $k-\omega$ -Modells und der ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle ist leicht stromab verschoben. An der oberen und unteren Kanalwand werden Rezirkulationsgebiete vorhergesagt. Die Überschallgebiete im Stoßsystem sind vergleichsweise kurz, der Druckrückgewinn erfolgt rasch und ohne Schwingungen.

Keines der hier vorgestellten Turbulenzmodelle gibt den gemessenen Druckverlauf exakt wieder. Um dennoch eine Bewertung der einzelnen Modelle zu ermöglichen, werden im Folgenden weitere Faktoren untersucht.

Eckenablösung

Ein deutlicher Unterschied zwischen den Turbulenzmodellen betrifft die Vorhersage der Strömungsablösung. Die Wirbelviskositätsmodelle und die ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle sagen eine ausgeprägte Eckenablösung voraus, wohingegen die ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle eine kleine Ablöseblase an den Kanalwänden ausbilden. Eine bewährte Methode zur Sichtbarmachung von Strömungsablöse- und Wiederanlegelinie stellt das sog. Ölanstrichverfahren dar. Dabei wird Öl oder ein ölartiger Ersatzstoff mit Farbstoffen versetzt und auf die Kanaloberfläche aufgetragen. Im Betrieb des Windkanals folgen die oberflächennahen Farbpartikel und Ölmoleküle der Strömung, wodurch die Strömungsrichtung an der Oberfläche sichtbar wird. Da eine derartige Untersuchung im Rahmen des Projekts nicht möglich war, wird hier auf die Experimente von CARROLL und DUTTON [21] zurückgegriffen (siehe Abb. 2.34). Die Vorstoßmachzahl des untersuchten Pseudo-Stoßsystems beträgt $M = 1.6$ und ist daher vergleichbar mit den hier vorgestellten Ergebnissen. Der Öffnungswinkel des Kanals beträgt jedoch nur $\alpha_{tot} = 0.26^\circ$, weshalb die Länge des Pseudo-Stoßsystems und die Anzahl der auftretenden Stöße nicht übereinstimmen.

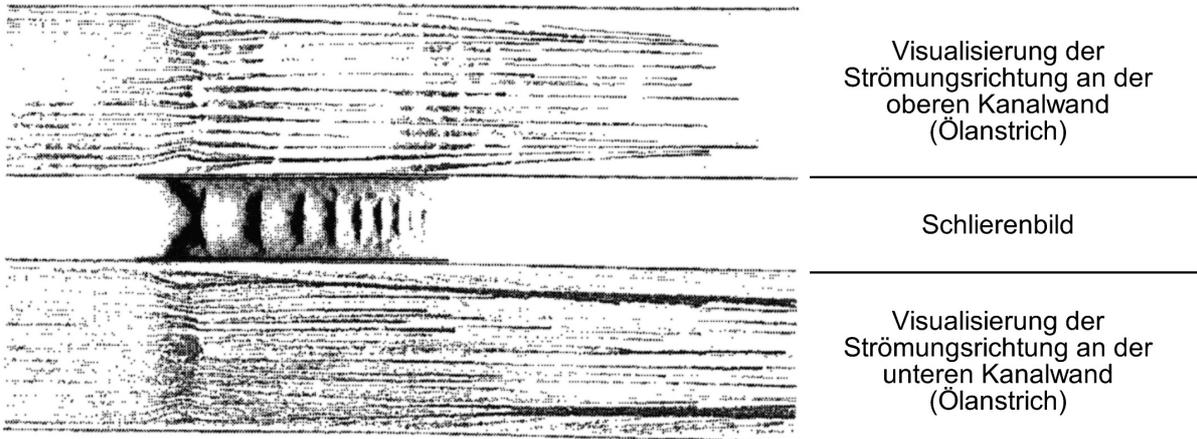


Abbildung 2.34: Experiment von CARROLL und DUTTON [21]: Schlierenbild eines Pseudo-Stoßsystems mit Vorstoßmachzahl $M=1.6$ (mittig) sowie Visualisierung der Oberflächenströmung an der oberen und unteren Kanalwand (oben, unten)

Die Visualisierung der Oberflächenströmung zeigt, dass eine Strömungsumlenkung von der Kanalwand zur Kanalmitte auftritt. Diese wird durch einen von der Seitenwand

kommenden schrägen Verdichtungsstoß hervorgerufen. Der Bereich ohne Wandstromlinien weist auf eine Ablöseblase hin. Aus den Ergebnissen geht aber nicht hervor, ob sich die Ablösung nur lokal in der Ecke befindet oder über die gesamte Seitenwand erstreckt. Im Falle einer Eckenablösung ist diese jedoch im Verhältnis zur Grenzschichtdicke sehr viel kleiner als von den Wirbelviskositätsmodellen und den ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modellen vorhergesagt. Zum Vergleich ist in Abb. 2.35 die berechnete Oberflächenströmung beispielhaft für das k - ω -Modell und für das BSL-EARSM dargestellt. Der Eckenwirbel des k - ω -Modells bedeckt mehr als die Hälfte der Kanalwand. Das BSL-EARSM hingegen zeigt im Gegensatz zu den Ergebnissen von CARROLL und DUTTON [21] eine deutliche Ablöse- und Wiederanlegelinie quer zur Strömungsrichtung. Dies lässt sich auf den höheren Öffnungswinkel der Düse zurückführen.

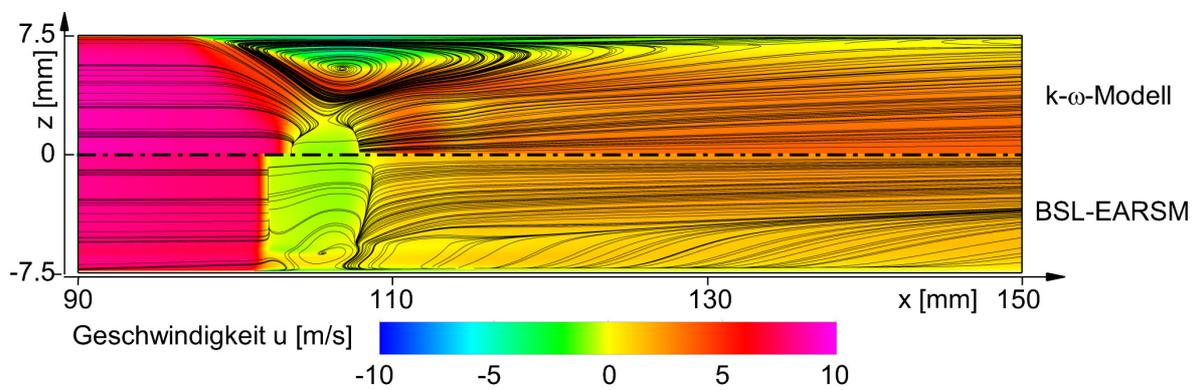


Abbildung 2.35: Simulierte Oberflächenströmung für das k - ω Modell und das BSL-EARSM

Eine eindeutige Aussage lässt sich aus den vorliegenden Daten nicht treffen. Die gezeigte Oberflächenströmung von CARROLL und DUTTON [21] unterstützt jedoch eher die Ergebnisse der ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle.

Schlierenbild

Eine weitere Möglichkeit zur Bewertung der Turbulenzmodelle stellen die experimentellen Schlierenbilder dar. Neben der Stoßposition kann der Stoßwinkel, die Stoßstruktur, die Anzahl sowie der Abstand der aufeinanderfolgenden Stöße und der Verlauf der Scherschicht zwischen Überschall- und Unterschallströmung verglichen werden.

In Abb. 2.36 sind experimentelle und numerische Schlierenbilder für die spaltfreie Konfiguration dargestellt. Der Dichtegradient für die numerischen Schlierenbilder wurde in Kanaltiefe integriert. Da die ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Schlierenbildern aufweisen, wird hier repräsentativ nur das BSL-EARSM Turbulenzmodell gezeigt. Abbildung 2.36 a) bis c) zeigen den Dichtegradienten in x -Richtung. Kompressionen sind im experimentellen Farbschlierenbild rot dargestellt, Expansionen erscheinen blau. In den Schwarz-Weiß-

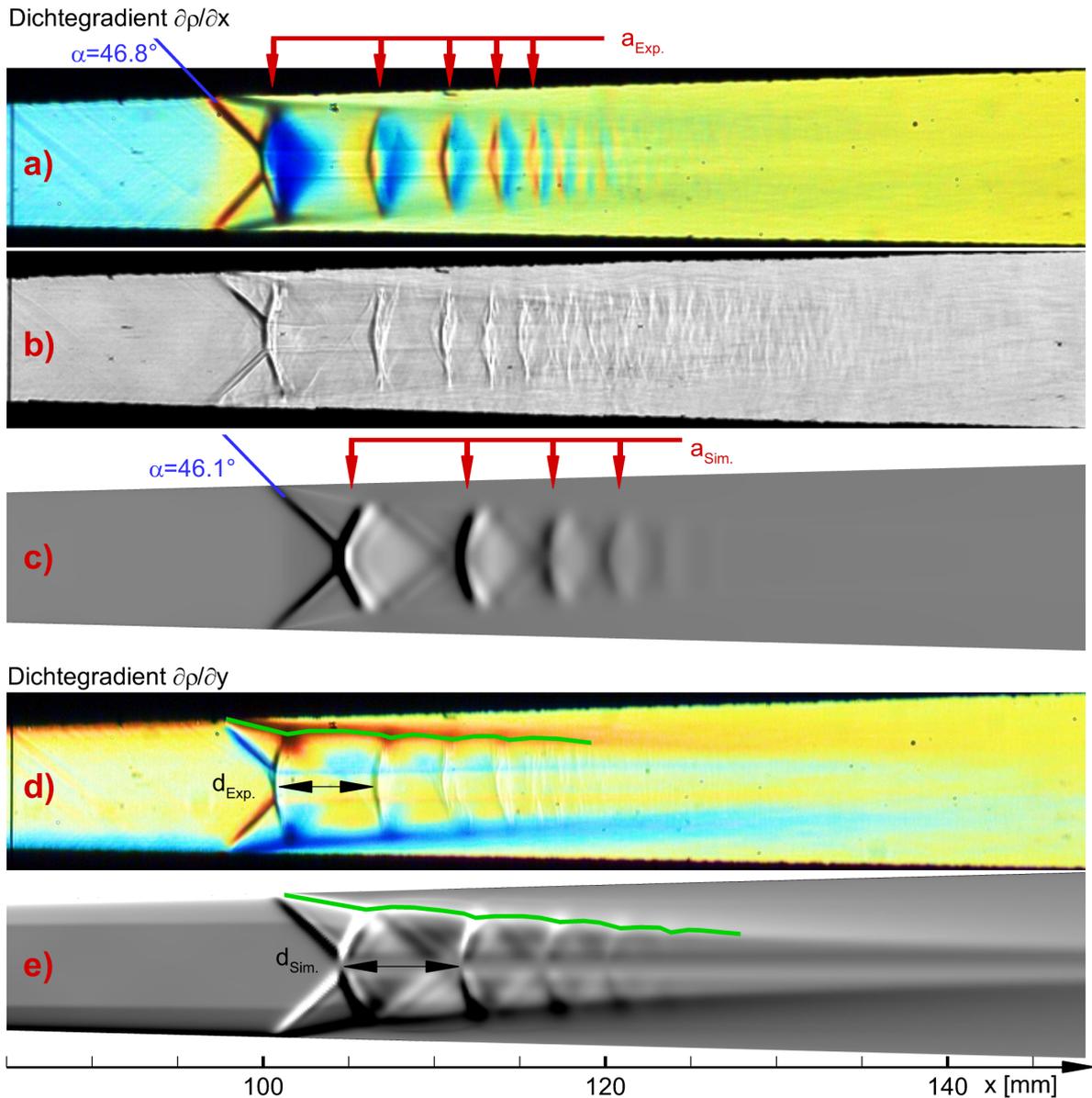


Abbildung 2.36: Schlierenbilder des Pseudo-Stoßsystems für die spaltfreie Konfiguration:

- a) Experimentelles Farbschlierenbild, Dichtegradient in x-Richtung
- b) Experimentelles Schlierenbild, Dichtegradient in x-Richtung
- c) Numerisches Schlierenbild, Dichtegradient in x-Richtung
- d) Experimentelles Farbschlierenbild, Dichtegradient in y-Richtung
- e) Numerisches Schlierenbild, Dichtegradient in y-Richtung

Der Dichtegradient für die numerischen Schlierenbilder wurde in Kanaltiefe integriert. Die Simulationen wurden mit dem BSL-EARSM Turbulenzmodell durchgeführt. Die Randbedingungen für Experiment und Simulation sind in Abb. 2.17 gegeben.

Schlierenbildern sind Kompressionen schwarz, Expansionen entsprechend weiß. Wie aus den Druckmessungen bereits hervorgeht, ist die Stoßposition der Simulation stromab verschoben. Der Stoßwinkel des ersten schrägen Verdichtungsstoßes (blau dargestellt) stimmt jedoch sehr gut mit dem Experiment überein (Simulation: $\alpha \approx 46.1^\circ$, Experiment: $\alpha \approx 46.8^\circ$). Die Machreflexion in der Mitte des Kanals fällt in der Simulation aufgrund der stromab verschobenen Stoßposition etwas kleiner aus. Der Winkel des reflektierten Stoßes weicht stark vom Experiment ab, die konkave Form und die Anzahl der folgenden Stöße werden dagegen gut wiedergegeben.

Die deutliche Überlegenheit der ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle über die anderen Modelle zeigt sich jedoch bei der Betrachtung der Scherschicht zwischen Über- und Unterschallgebieten und im Abstand der aufeinanderfolgenden Stöße. Zur besseren Visualisierung der Scherschicht ist in Abb. 2.36 d) und e) der Dichtegradient in y -Richtung dargestellt. Hier sind im Farbschlierenbild Expansionen in positiver y -Richtung rot und Kompressionen blau dargestellt. Dies wird u. a. an der Grenzschicht im Überschallbereich deutlich. Mit zunehmendem Wandabstand sinkt die statische Temperatur bei etwa gleichbleibendem statischen Druck, weshalb die Dichte zunimmt.

In Grün ist der Verlauf der Scherschicht an der oberen Seite des Shocktrains nachgezeichnet. Hieraus ist ersichtlich, dass sich die Überschallgebiete deutlich von der Wand ablösen. Die Scherschicht der Überschallsegmente weist nur eine leichte Ausbeulung zwischen den aufeinanderfolgenden Stößen auf. Im Vergleich dazu zeigen alle Wirbelviskositätsmodelle und die ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle eine starke Ausbeulung (siehe Abb. 2.19 und 2.21). Diese Ausbeulung nimmt, wie in Kapitel 2.4.2 gezeigt wird, im Falle einer spaltinduzierten Eckenablösung sowohl im Experiment als auch in der Simulation zu. Daher ist es naheliegend, dass im Experiment bei der spaltfreien Konfiguration keine Eckenablösung auftritt.

Ein weiteres Argument für die ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle ist die axiale Ausdehnung der einzelnen Überschallsegmente. Diese Turbulenzmodelle weisen die geringste Distanz zwischen den einzelnen Stößen auf. Mit $d_{sim.} = 6.8 \text{ mm}$ ist diese dennoch größer als im Experiment ($d_{sim.} = 5.8 \text{ mm}$). Dieser Unterschied lässt sich auf den im Vergleich zum Experiment zu flachen Winkel des ersten reflektierten Stoßes (kommend von der Machreflexion) zurückführen, infolge dessen die an der Schalllinie reflektierte Expansion einen entsprechend flacheren Winkel aufweist und der nächste Stoß stromab verschoben auftritt.

Aus dem Vergleich mit den experimentellen Schlierenbildern lässt sich schließen, dass die ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle bezüglich Stoßstruktur, Stoßanzahl und dem Verlauf der Scherschicht deutlich bessere Ergebnisse liefern als die ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle bzw. Wirbelviskositätsmodelle.

Dimensionsloser Geschwindigkeitsverlauf der Grenzschicht

Eine weitere Möglichkeit zur Beurteilung der Turbulenzmodelle stellt der dimensionslose Geschwindigkeitsverlauf in der Grenzschicht dar. Dieser ist in Abb. 2.37 für die Wirbelviskositätsmodelle (links) und die Reynolds-Spannungs-Modelle (rechts) entlang der horizontalen Symmetrieebene für $x = 60 \text{ mm}$ dargestellt. Aufgetragen ist die dimensionslose, Van-Driest transformierte Geschwindigkeit u_{vD}^+ über dem dimensionslosen Wandabstand y^+ .

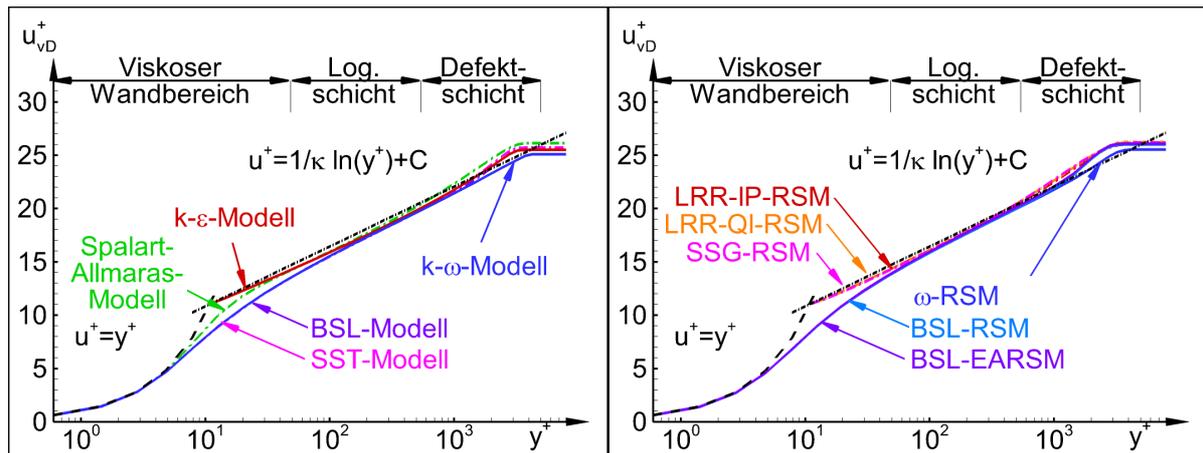


Abbildung 2.37: Dimensionsloser Geschwindigkeitsverlauf in der Grenzschicht bei $x=60 \text{ mm}$ auf der horizontalen Symmetrieebene
Wirbelviskositätsmodelle sind links, Reynolds-Spannungs-Modelle rechts dargestellt.
Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Der dimensionslose Wandabstand wird aus dem Wandabstand z , der Wandreibungsgeschwindigkeit u_τ , der Dichte ρ und der dynamischen Viskosität μ nach Gleichung 2.14 berechnet:

$$y^+ = \frac{z \cdot u_\tau \cdot \rho}{\mu} . \quad (2.14)$$

Die Wandreibungsgeschwindigkeit u_τ berechnet sich nach Gleichung 2.15 aus der Wand Schubspannung τ_W und der lokalen Dichte ρ_W an der Wand:

$$u_\tau = \sqrt{\frac{\tau_W}{\rho_W}} . \quad (2.15)$$

Die Van-Driest transformierte Geschwindigkeit u_{vD}^+ wird nach Gleichung 2.16 berechnet:

$$u_{vD}^+(y) = \frac{1}{u_\tau} \cdot \int_0^y \sqrt{\frac{\rho(y)}{\rho_W}} \cdot \frac{du(y)}{dy} dy . \quad (2.16)$$

Da keine Messungen zu den Grenzschichtprofilen im Überschallteil der ersten Düse vorliegen, werden die Daten mit dem universellen Wandgesetz verglichen. Dieses besagt, dass die dimensionslose Geschwindigkeit u^+ in der viskosen Unterschicht ($y^+ < 5$) linear mit dem Wandabstand zunimmt:

$$u^+ = y^+ . \quad (2.17)$$

Anschließend geht das Geschwindigkeitsprofil asymptotisch in einen Bereich über, der nach dem logarithmischen Überlappungsgesetz

$$u^+ = \frac{1}{\kappa} \cdot \ln(y^+) + C \quad (2.18)$$

mit $\kappa = 0.41$ und $C = 5.1$ beschrieben wird.

Für die dazwischen liegende Übergangsschicht und die im Anschluss an die logarithmische Schicht folgende Defektschicht existieren ebenso Näherungsformeln [122]. Diese sollen aber hier nicht weiter diskutiert werden.

Wie man Abb. 2.37 (links) entnehmen kann, folgen die ω -basierten Wirbelviskositätsmodelle sehr gut der linearen Näherung in der viskosen Unterschicht und gehen anschließend asymptotisch in das Überlappungsgesetz über. Die Steigung des Überlappungsbereichs, welcher durch die von-Karman-Konstante κ beschrieben wird, stimmt ebenso gut überein. Der Absolutwert hingegen (vorgegeben durch die Integrationskonstante C) wird in diesem Bereich unterschätzt. In der nachfolgenden Defektschicht steigt die dimensionslose Geschwindigkeit erwartungsgemäß etwas stärker an. Dieser Aspekt wird jedoch von dem k - ω Modell nicht wiedergegeben.

Ähnlich gut wie die ω -basierten Wirbelviskositätsmodelle trifft das Spalart-Allmaras Modell, welches nur leicht in der Übergangsschicht sowie im Absolutwert in der Kernströmung abweicht.

Da die ε -basierten Modelle eine Wandfunktion verwenden, müssen sowohl y^+ als auch u_{vD}^+ für einen Vergleich zunächst wie folgt korrigiert werden:

$$y_{\varepsilon(y)}^+ = y_{(y)}^+ + 11.06 , \quad (2.19)$$

$$u_{vD,\varepsilon(y)}^+ = u_{vD(y)}^+ + 11.06 . \quad (2.20)$$

Wie man in Abb. 2.37 sehen kann, beginnt das Van-Driest transformierte Geschwindigkeitsprofil des k - ε -Modells entsprechend am Schnittpunkt der linearen Näherung für die viskose Unterschicht und dem logarithmischen Überlappungsgesetz bei $y^+ = 11.06$ mit $u_{vD}^+ = 11.06$. Der Vorteil des Wandmodells ist, dass sich unabhängig von der Gitterauflösung derselbe Grenzschichtverlauf ausbildet. Der viskose Wandbereich wird hierbei vollständig vernachlässigt. Für Strömungen mit Druckgradienten sind solch einfache Wandmodelle jedoch ungeeignet [60].

Die ε -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle (Abb. 2.37 rechts) zeigen ein nahezu identisches Verhalten über die gesamte Grenzschicht. Auch hier wird der viskose Wandbereich nicht abgebildet. Im Gegensatz dazu wird dieser Bereich von den ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modellen vollständig aufgelöst. Auch der nachfolgende Überlappungsbereich stimmt sehr gut mit dem logarithmischen Überlappungsgesetz überein. Das ω -Reynolds-Spannungs-Modell gibt jedoch, ähnlich wie das k - ω Modell, die Defektschicht falsch bzw. nicht wieder. Betrachtet man die dimensionsbehafteten Grenzschichtprofile der ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle (Abb. 2.38), so zeigt sich, dass durch die nicht ausgebildete Defektschicht in Wandnähe fälschlicherweise ein fülligeres Grenzschichtprofil entsteht. Somit erhöht sich der Impuls in der wandnahen Schicht und die Strömung ist weniger sensitiv gegenüber Ablösungen. Dies erklärt, warum das ω -Reynolds-Spannungs-Modell im Vergleich zu den anderen beiden Modellen eine leicht stromab verschobene Stoßposition vorhersagt (siehe Abb. 2.22). Entsprechend bildet sich eine etwas dickere Ablöseblase, die den Überschallteil des nachfolgenden Shocktrains noch stärker zur Kanalmitte beugt. Daher ist das ganze Pseudo-Stoßsystem des ω -Reynolds-Spannungs-Modells etwas kürzer (siehe Abb. 2.21) und der Druckrückgewinn schneller. In Anbetracht dessen stellen das BSL Reynolds-Spannungs-Modell und das BSL-EARSM die besten Turbulenzmodelle für den vorliegenden Fall dar. Da das BSL-EARSM nur zwei Erhaltungsgrößen löst, ist der Rechenaufwand bedeutend geringer. Darüber hinaus erweist sich das BSL-EARSM als sehr viel robuster als das BSL Reynolds-Spannungs-Modell. Daher wird dieses Modell für alle weiteren Simulationen verwendet.

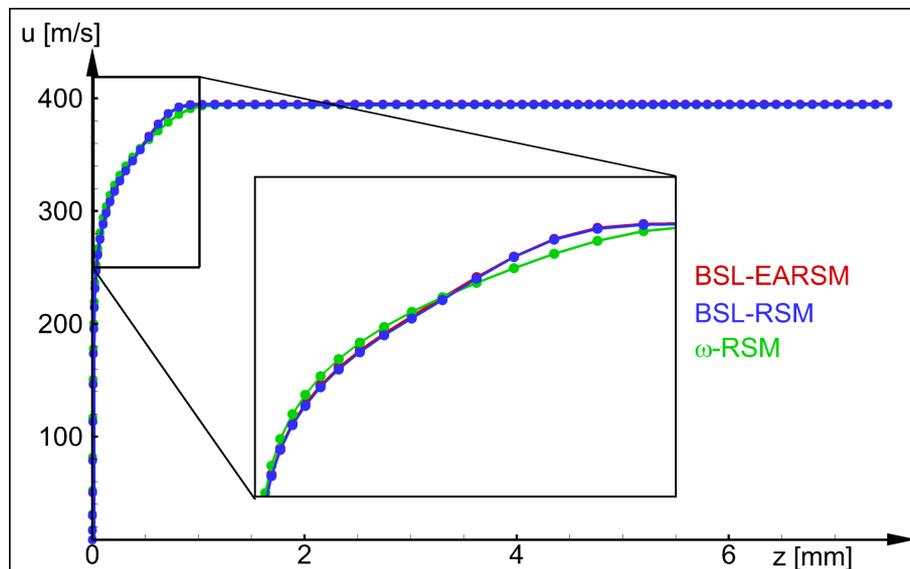


Abbildung 2.38: Dimensionsbehafteter Geschwindigkeitsverlauf in der Grenzschicht bei $x=60$ mm auf horizontaler Symmetrieebene für die ω -basierten Reynolds-Spannungs-Modelle. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

2.4 Simulation der spaltbehafteten Konfiguration

In diesem Abschnitt wird der Einfluss kleiner Spalte auf die Ausbildung des Pseudo-Stoßsystems auf Basis experimenteller als auch numerischer Ergebnisse analysiert. Der experimentelle Aufbau wurde in Kapitel 2.2.4 ausführlich beschrieben. Das Ausgangsgitter für die numerische Untersuchung ist Gitter 4 (Tab. 2.2). Der Spalt für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite wurde mit weiteren $1.4 \cdot 10^6$ Zellen aufgelöst. Die Konfiguration mit $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite wurde aufgrund der erweiterten Kanaltiefe mit zusätzlichen $2.1 \cdot 10^6$ Zellen aufgelöst. Im Gegensatz zu den vorherigen Ergebnissen konnte für die spaltbehafteten Konfigurationen kein stationäres Ergebnis erzielt werden, weshalb für diese Konfigurationen die zeitlich gemittelten Ergebnisse instationärer Simulationen gezeigt werden. Die vorrangigen Fragen dieser Untersuchungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Haben Spalte in der Größenordnung von $\Delta z = \mathcal{O}(10^{-4})$ einen reproduzierbaren Einfluss auf die gemessene Druckverteilung in einer Lavaldüse?
- Wird durch diese Spalte die Struktur des Pseudo-Stoßsystems beeinflusst?
- Beeinflussen Spalte das Symmetrieverhalten bzw. die laterale Oszillation des Pseudo-Stoßsystems?
- Leisten Spalte einen Beitrag zur axialen Stoßoszillation?

Wie in Abschnitt 2.2.4 beschrieben, sind kleine Spalte in Windkanälen mit optischer Zugänglichkeit kaum oder nur schwer vermeidbar. Falls sich ein signifikanter Unterschied zwischen dem Druckverlauf der spaltfreien und der spaltbehafteten Konfiguration nachweisen lässt, so ist dies für Rechnungs-/Messungsvergleiche von gravierender Bedeutung. Kann weiterhin nachgewiesen werden, dass durch die Anwesenheit von Spalten die Form und das Symmetrieverhalten beeinflusst werden, so schwächt dies gegebenenfalls die Aussagekraft bisheriger Experimente zu diesem Thema. Der Nachweis einer Rückwirkung auf die Stoßoszillation wäre zudem auch für Experimente zur allgemeinen Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung von nachhaltiger Bedeutung.

2.4.1 Abweichungen im Druck

Im folgenden Diagramm (Abb. 2.39) sind die experimentellen (links) und numerischen (rechts) Druckverläufe entlang der oberen Kanalwand der Lavaldüse gezeigt. Als Betriebspunkt wurde der Basistestfall mit $p_{01} = 6 \text{ bar}$, $T_{01} = 300 \text{ K}$ und einem Totaldruckverhältnis von $p_{02}/p_{01} = 0.7$ untersucht. Die experimentellen Messpunkte sind zur besseren Darstellung durch Linien verbunden. Die spaltfreie Konfiguration ist schwarz dargestellt, die Konfigurationen mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ und $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite sind rot bzw. blau dargestellt. Wie aus Abb. 2.39 hervorgeht, zeigen die spaltbehafteten Konfigurationen im experimentellen Druckverlauf drei ausgeprägte Abweichungen vom Druckverlauf der spaltfreien Konfiguration:

- ① Kurz nach dem kritischen Querschnitt mit $M = 1$ tritt eine lokale Druckspitze bei $x=22 \text{ mm}$ auf, die mit zunehmender Spaltweite größer wird.
- ② Vor dem Stoßsystem ($x \approx 100 \text{ mm}$) tritt mit zunehmender Spaltweite ein leichter Druckanstieg auf. Wie bereits in Kapitel 2.2.2 in Abb. 2.11 gezeigt wurde, nimmt diese Prä-Kompression mit abnehmendem Ruhedruckverhältnis zu.
- ③ Der Druck im Shocktrain und der Mischungszone nimmt gegenüber der spaltfreien Konfiguration etwas ab. Die Re-Kompression erfolgt langsamer.

Die Abweichungen werden auch von der Simulation so wiedergegeben. Lediglich die Druckspitze stromab des engsten Querschnitts tritt in der Simulation der spaltfreien Konfiguration

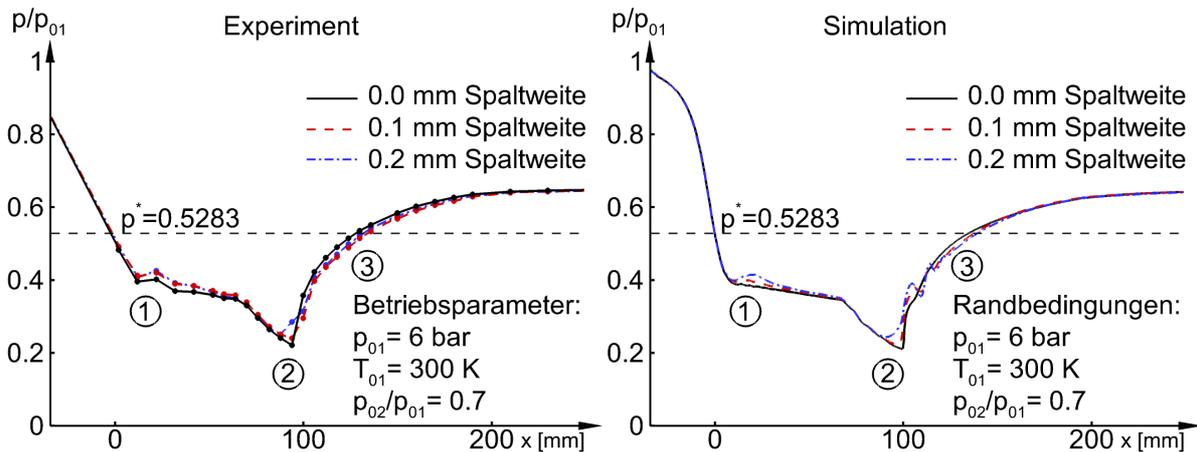


Abbildung 2.39: Experimenteller (links) und simulierter (rechts) dimensionsloser Druckverlauf entlang der oberen Kanalwand für die spaltfreie Konfiguration (schwarz) sowie für die Konfigurationen mit $\Delta z=0.1 \text{ mm}$ und $\Delta z=0.2 \text{ mm}$ Spaltweite (rot, blau) Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Konfiguration im Vergleich zum Experiment nicht auf. Eine naheliegende Erklärung hierfür ist, dass der Spalt durch die Aluminiumfolie nicht vollständig abgedichtet werden konnte.

Da die Simulationen die Auswirkungen des Spalts auf den statischen Druckverlauf sehr gut wiedergeben können, werden diese im Folgenden verwendet, um die Wechselwirkung des Spalts mit der Hauptströmung zu analysieren und die Auswirkung auf die Druckverteilung zu erklären.

Engster Querschnitt

Die Druckspitze kurz nach dem engsten Querschnitt lässt sich anhand Abb. 2.40 erklären. Dargestellt ist die zeitlich gemittelte lokale Machzahl auf zwei verschiedenen Schnittebenen für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite. Rechts oben ist eine Skizze des engsten Querschnitts gezeigt, in der beide Schnittebenen angedeutet sind. Schnittebene A-A (oben) befindet sich direkt auf der vertikalen Symmetrieebene ($z = 0 \text{ mm}$). Der erste engste Querschnitt A_1^* ist durch einen Pfeil gekennzeichnet. Die Strömung beschleunigt durch die Düse und erreicht hier Machzahl $M = 1$ (schwarze Linie). Die Schnittebene B-B liegt bei $z = 7.45 \text{ mm}$ und verläuft direkt durch die Mitte des Spalts. Die 2-D Stromlinien verdeutlichen die Strömungsrichtung im Spalt.

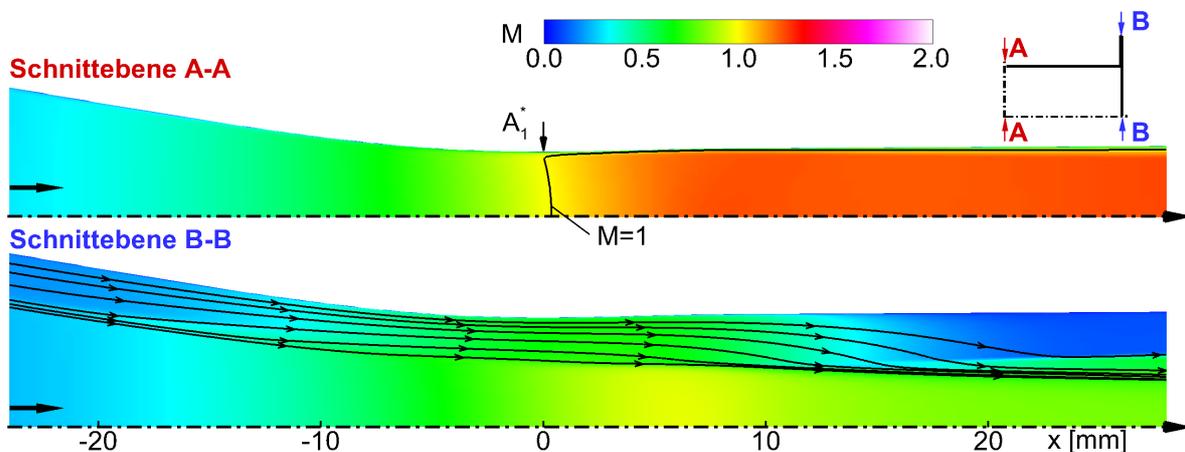


Abbildung 2.40: Machzahlverteilung im ersten engsten Querschnitt A_1^* für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite auf zwei Schnittebenen

Schnittebene A-A zeigt die zeitlich gemittelte lokale Machzahl auf der Symmetrieebene ($z = 0 \text{ mm}$). Schnittebene B-B zeigt die zeitlich gemittelte lokale Machzahl auf einer Schnittebene durch den Spalt ($z = 7.45 \text{ mm}$). Die 2-D Stromlinien deuten die Strömungsrichtung im Spalt an. Machzahl $M = 1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Da die Strömung bei $M = 1$ die kritische bzw. maximale Massenstromdichte $\rho^* \cdot u^*$ erreicht, wird ein Teil der Strömung durch den Spalt gepresst. Verstärkt wird dieser Effekt durch den geometriebedingt stark negativen Druckgradienten innerhalb der ersten Düse. Die Grenzschicht ist daher in diesem Bereich besonders dünn. Dies wird vor allem im unteren Plot deutlich, der nur 0.05 mm von der Wand entfernt ist. Kurz nach dem engsten Querschnitt bei $x = 7.17 \text{ mm}$ ändert sich der Öffnungswinkel der ersten Düse von $\alpha_{tot} = 3.0^\circ$ auf $\alpha_{tot} = 0.6^\circ$ und der axiale Druckgradient nimmt entsprechend ab. Da sich der statische Druck der Kernströmung in der Lavaldüse der Spaltströmung aufprägt, führen reibungsinduzierte Druckverluste im Spalt dazu, dass die Strömungsgeschwindigkeit sowie der Ruhedruck p_0 und die Ruhedichte ρ_0 abnehmen. Dies ist aufgrund der Massenerhaltung nur möglich, wenn ein Teil des Bypass-Massenstroms zurück in den Kanal strömt. Da die Kernströmung sich bereits im Überschall befindet, führt eine Massenzufuhr (ähnlich wie eine Energiezufuhr) zur Abnahme der lokalen Machzahl und folglich zu einem Anstieg des statischen Drucks. Dieser Effekt wirkt sich bei Machzahlen von $M \approx 1$ besonders stark aus, weshalb bereits ein geringer Massenstrom eine signifikante Änderung des Drucks zur Folge hat. Stromab nimmt das Querschnittsverhältnis A/A_1^* und somit auch die Machzahl weiter zu, wodurch die Auswirkung der Massenzufuhr wieder abnimmt.

Prä-Kompression vor dem Stoß

Der zweite signifikante Unterschied im Druckverlauf zwischen spaltfreier und spaltbehafteter Konfiguration tritt kurz vor dem Pseudo-Stoßsystem auf. Um die Druckzunahme kurz vor dem Pseudo-Stoßsystem zu erklären, sind in Abb. 2.41 dieselben beiden Schnittebenen A-A ($z = 0 \text{ mm}$) und B-B ($z = 7.45 \text{ mm}$) aus Abb. 2.40 für den Bereich kurz vor dem Pseudo-Stoßsystem dargestellt.

An der Stelle $x = 70 \text{ mm}$ ändert sich der Öffnungswinkel von $\alpha_{tot} = 0.6^\circ$ zu $\alpha_{tot} = 3.0^\circ$. Wie man auf der Symmetrieebene sehen kann, steigt damit die Machzahl ab dieser Stelle im Kanal stark an. Der statische Druck fällt ab und nimmt erst an der Stoßposition wieder sprunghaft zu. Da im Spalt eine Unterschallströmung vorliegt (Schnittebene B-B), kommt es zu einer Stromaufwirkung des negativen Druckgradienten. Infolgedessen tritt ein Teil der Strömung kurz vor dem Knick bei $x \approx 65 \text{ mm}$ in den Spalt ein und beschleunigt dort. Stromab des ersten Stoßes führt der stark positive Druckgradient zu einer Rückströmung innerhalb des Spalts. Bei $x \approx 90 \text{ mm}$ herrscht der geringste statische Druck im Kanal. Wie anhand der 2-D Stromlinien zu erkennen ist, tritt der aus beiden Richtungen kommende Bypass-Massenstrom an dieser Stelle wieder in den Kanal ein. Ein Vergleich der Stoßpositionen der spaltbehafteten Konfiguration (Schnittebene A-A

in Abb. 2.41) und der spaltfreien Konfiguration (Abb. 2.21-f) offenbart, dass der Spalt nur zu einer geringen Stromaufverschiebung des Pseudo-Stoßsystems von $\Delta x \approx 2-3 \text{ mm}$ führt. Um die signifikante Druckzunahme 10 mm vor dem Stoßsystem (speziell für den Fall mit $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite) zu erklären, ist in Abb. 2.42 ein Konturplot der lokalen Machzahl auf verschiedenen Schnittebenen konstanter x-Position für die spaltfreie Konfiguration (links) und die Konfiguration mit 0.2 mm Spaltweite (rechts) dargestellt. Wie man der Abbildung entnehmen kann, verlaufen die Iso-Machzahl-Konturen für die spaltfreie Konfiguration nahezu wandparallel und sind rein grenschichtinduziert. In der Kernströmung herrscht eine konstante Machzahlverteilung, die mit zunehmender x-Position aufgrund der Divergenz der Düse leicht ansteigt. Der Konturplot für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite zeigt, dass im Spalt an der Stelle $x = 80 \text{ mm}$ die lokale Machzahl $M = 0.5 - 0.8$ beträgt. Auf den beiden folgenden Schnittebenen nimmt die Strömungsgeschwindigkeit im Spalt stark ab und es bildet sich ein Massenstrom in die Scherströmung des Kanals aus. Dies führt lokal zu einer Verdrängung der Überschallströmung und es bildet sich ein schwacher schiefer Stoß, der aus der Ecke in Richtung Kanalmitte verläuft. Die Stoßfront ist im Konturplot bei $x = 87.5 \text{ mm}$ eingezeichnet. Dieser Stoß erreicht die Kanalmitte erst bei $x \approx 90 \text{ mm}$, weshalb es erst ab dort zu einer signifikanten Zunahme des auf Symmetrieebene ermittelten Drucks kommt (siehe Abb. 2.39), obwohl der Bypass-Massenstrom schon bei $x \approx 85 \text{ mm}$ in den Kanal eintritt.

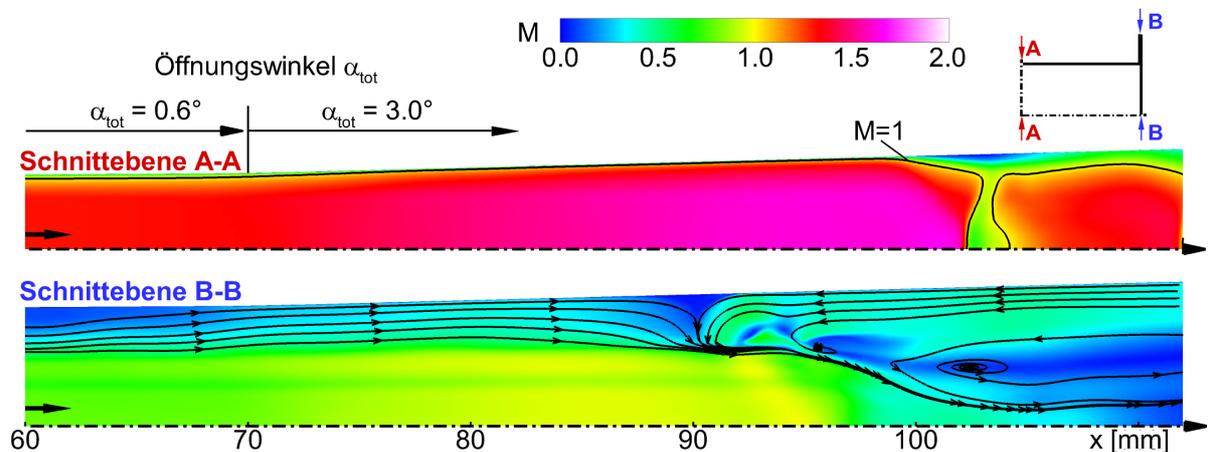


Abbildung 2.41: Machzahlverteilung am Beginn des Pseudo-Stoßsystems für die Konfiguration mit $\Delta z=0.1 \text{ mm}$ Spaltweite

Dargestellt sind dieselben Schnittebenen wie in Abb. 2.40. Die 2-D Stromlinien deuten die Strömungsrichtung im Spalt an. Machzahl $M=1$ ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

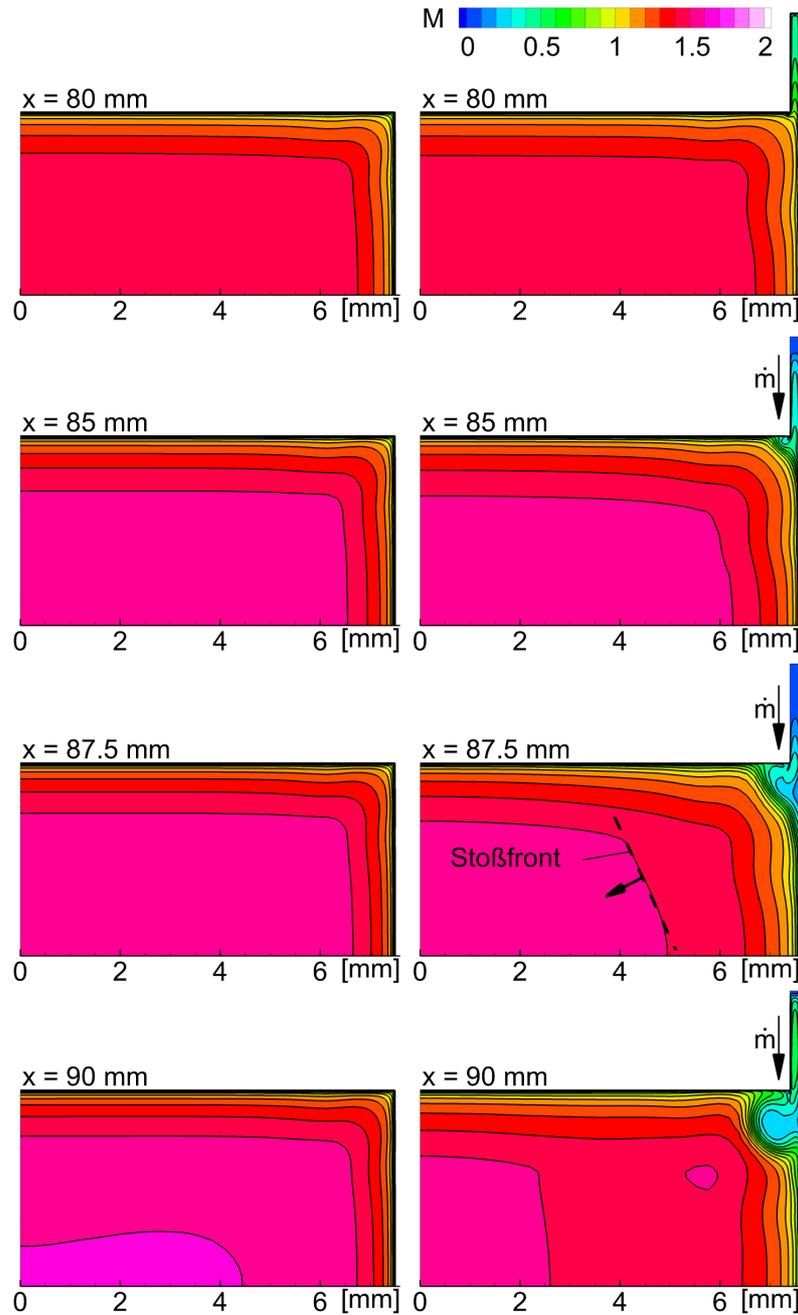


Abbildung 2.42: Konturplot der Machzahl ($\Delta M=0.1$) an verschiedenen x-Positionen für die spaltfreie Konfiguration (links) und die Konfiguration mit $\Delta z=0.2$ mm Spaltweite (rechts) Der spaltinduzierte Bypass-Massenstrom führt zu einem schrägen Verdichtungsstoß im Kanal. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Re-Kompression nach dem Stoß

Die spaltbehafteten Konfigurationen weisen im Bereich des Shocktrains und der nachfolgenden Mischungszone eine verzögerte Re-Kompression auf. Diese lässt sich anhand der veränderten 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems erläutern.

Abbildung 2.43 zeigt das Pseudo-Stoßsystem für die spaltfreie Konfiguration. Ähnlich wie in den Abbildungen 2.23 bis 2.33 entspricht die gelbe Iso-Fläche der Machzahl $M = 1$ und hüllt den Überschallbereich ein. Die blauen Flächen stellen Rezirkulationsgebiete dar und entsprechen einer axialen Geschwindigkeit von $u = -10^{-3} \text{ m/s}$. Wie bereits erwähnt, treten die Rezirkulationsgebiete an allen Seitenwänden auf und führen dazu, dass der nachfolgende Shocktrain eine rechteckige Form aufweist. Die Gesamtlänge von Shocktrain und Mischungszone beträgt 28 mm und endet bei $x = 133 \text{ mm}$.

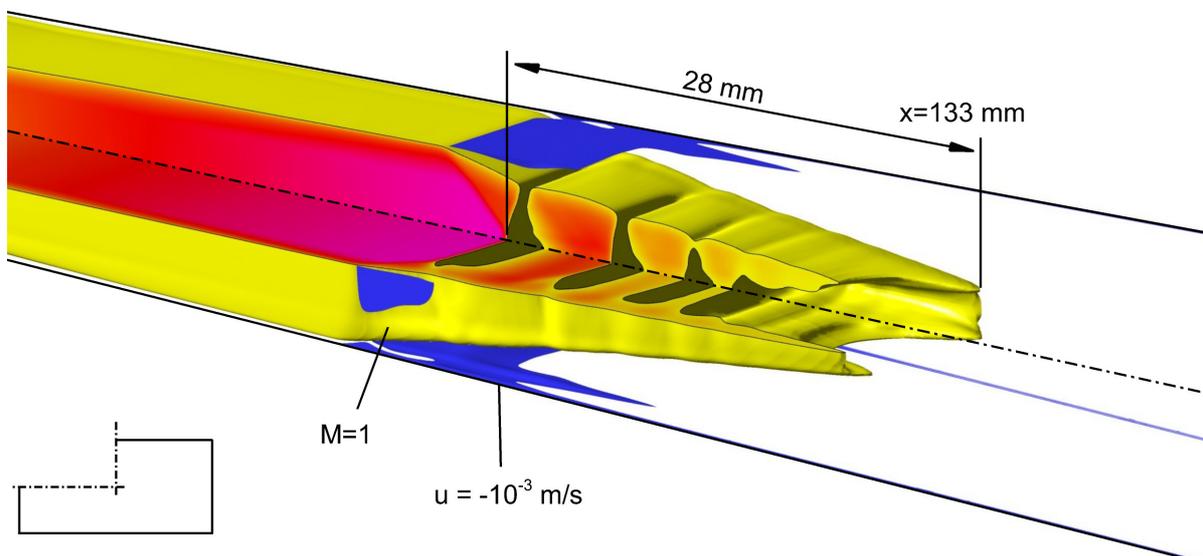


Abbildung 2.43: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für die spaltfreie Konfiguration

Die gelbe Iso-Fläche zeigt die Struktur des Überschallgebiets und entspricht Machzahl $M=1$. Die blaue Iso-Fläche zeigt Rückströmgebiete und entspricht einer axialen Geschwindigkeit $u=-10^{-3} \text{ m/s}$. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

Abbildung 2.44 zeigt denselben Ausschnitt für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite. Der hohe Druckgradient über den ersten Stoß führt dazu, dass sich in den Spalten eine Rückströmung einstellt (siehe Kapitel 2.4.1). Damit einhergehend bilden sich in den Ecken des Kanals große Rezirkulationsgebiete, die zu einer starken Strömungsumlenkung mit ausgeprägten schrägen Verdichtungsstößen führen und somit das Pseudo-Stoßsystem einleiten. Die aus den Ecken kommenden Verdichtungs-

stöße müssen, wie schon in der Turbulenzmodellstudie gezeigt, eine längere Distanz im Kanal durchlaufen, bis sie als Expansionen reflektiert werden. Daher sind die einzelnen Überschallsegmente auch hier in axialer Richtung weiter ausgedehnt und die Länge des Shocktrains nimmt zu. Ebenso nimmt die vertikale Ausdehnung der Überschallsegmente zu, wodurch der Shocktrain näher an die Kanalwand heranreicht und sich als Schwingung im Druckverlauf widerspiegelt. Des Weiteren reduziert die Verdrängungsdicke der Rezirkulationsgebiete den Druckrückgewinn der Unterschallströmung. Shocktrain und Mischungszone weisen eine Gesamtlänge von 37 mm auf und enden erst bei $x = 139\text{ mm}$.

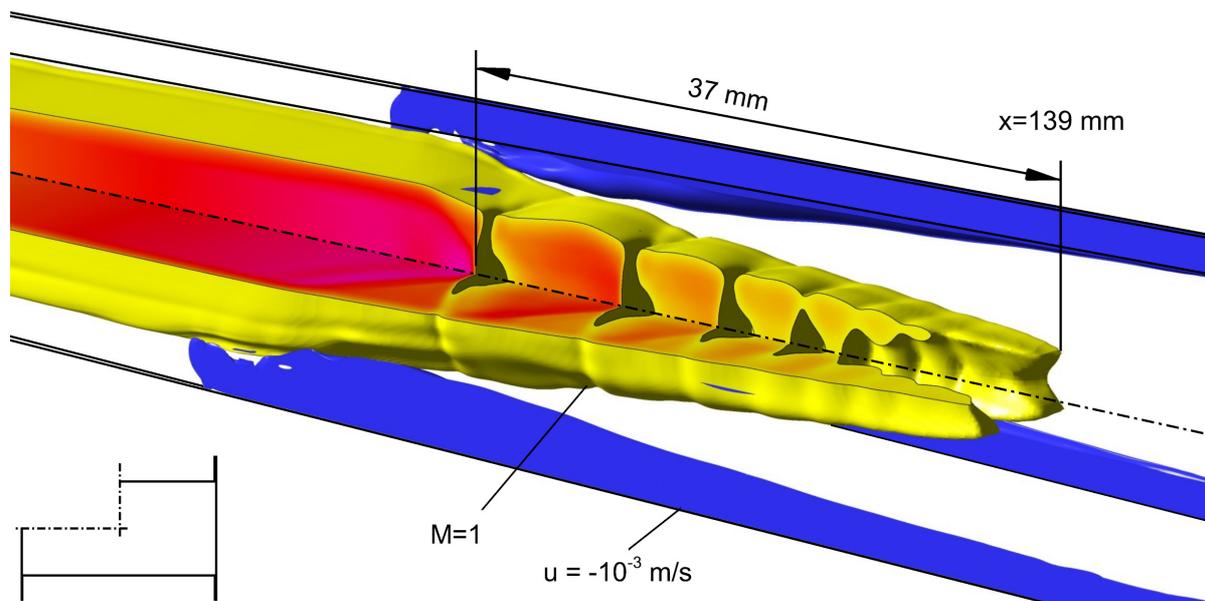


Abbildung 2.44: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für die Konfiguration mit 0.1 mm Spaltweite. Die gelbe Iso-Fläche zeigt die Struktur des Überschallgebiets und entspricht Machzahl $M=1$. Die blaue Iso-Fläche zeigt Rückströmgebiete und entspricht einer axialen Geschwindigkeit $u = -10^{-3}\text{ m/s}$. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

2.4.2 Deformation des Stoßsystems

Aus den Abbildungen 2.43 und 2.44 wird deutlich, dass in der Simulation bereits kleine Spalte zu einer deutlichen Deformation des gesamten Pseudo-Stoßsystems führen. Im Folgenden soll dies durch einen Vergleich experimenteller und numerischer Schlierenbilder überprüft werden. Die Ergebnisse müssen jedoch hinsichtlich der in Kapitel 2.2.3 beschriebenen Fehlerquellen mit Vorsicht betrachtet werden. So ist beispielsweise die Spaltweite im Experiment nicht zwangsläufig konstant entlang der ersten Düse. Für die spaltfreie Konfiguration wurde der Spalt mit einer Aluminiumfolie abgedichtet. Der

Druckverlauf lässt jedoch vermuten, dass dennoch kleine Bypass-Massenströme aufgetreten sind. Darüber hinaus sind in den Schlierenbildern kleine Fransen von der Aluminiumfolie erkennbar, die in den Kanal ragen (siehe Ausschnitt in Abb. 2.45 oben) und dort sowohl eine Versperrung des Kanals als auch eine zusätzliche Oberflächenrauigkeit darstellen. Vor allem im Bereich des engsten Querschnitts kann dies stromab zu massiven Abweichungen führen. Hinsichtlich dieser Ungenauigkeiten kann an dieser Stelle keine perfekte Übereinstimmung von numerischen und experimentellen Ergebnissen erwartet werden. Die dargestellten Trends sind jedoch klar reproduzierbar und spiegeln die Sensitivität des Pseudo-Stoßsystems wider.

Zum Vergleich sind in Abb. 2.45 (oben) nochmals die Schlierenbilder der spaltfreien Konfiguration gezeigt (siehe auch Abb. 2.36). Dargestellt ist der Dichtegradient in horizontaler Richtung (Kompressionen=Schwarz, Expansionen=Weiß). Der initiale schräge Verdichtungsstoß ① reicht bei der spaltfreien Konfiguration bis an die Kanalwand. In der Kanalmitte bildet sich eine scharfe Machreflexion aus ②, deren erhöhter Totaldruckverlust zwei im experimentellen Schlierenbild erkennbare Scherschichten nach sich zieht. Der reflektierte Stoß ③ fällt unter einem steilen Winkel bis nahe an die Kanalwand zurück. Im Shocktrain folgen vier bis fünf weitere Stöße ④, die Scherschicht zwischen dem Shocktrain und dem umgebenden Unterschallgebiet verläuft nahezu gerade in Richtung Kanalmitte (rot gestrichelte Linie). Der Abstand zwischen dem ersten und dem zweiten Stoß beträgt für die spaltfreie Konfiguration $d_{0,E} = 5.8 \text{ mm}$.

Im Vergleich dazu zeigt das numerische Schlierenbild (Dichtegradient in Kanaltiefe integriert) einen leicht stromab verschobenen ersten Stoß ①, weshalb die Höhe der Machreflexion ② etwas kleiner ausfällt. Der reflektierte Stoß ③ fällt unter einem sehr viel flacheren Winkel zurück. Die Anzahl der nachfolgenden Stöße ④ und die Scherschicht des Shocktrains werden jedoch sehr gut wiedergegeben. Der Abstand zwischen dem ersten und dem zweiten Stoß ist mit $d_{0,S} = 6.8 \text{ mm}$ nur minimal größer als im Experiment. Der erste Stoß ① der Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite (Abb. 2.45 mittig) wird in der Grenzschicht sowohl von Experiment als auch von der Simulation nur sehr unscharf wiedergegeben. Sowohl die Position als auch Höhe der Machreflexion ② und der reflektierte Stoß ③ stimmen zwischen Experiment und Simulation sehr gut überein. Besonders gravierend ist der Einfluss des Spaltes gegenüber der spaltfreien Konfiguration im Bereich des Shocktrains. Die Anzahl der Stöße ④ und die Länge des Stoßsystems nehmen leicht zu. Es bilden sich deutlich größere Überschallsegmente und der Abstand zwischen erstem und zweitem Stoß steigt im Experiment und in der Simulation auf $d_{1,E} = 7.6 \text{ mm}$ bzw. $d_{1,S} = 9.5 \text{ mm}$ an. Außerdem kann man anhand der Scherschicht erkennen, dass die Überschallsegmente zwischen den einzelnen Stößen eine divergent-konvergente Form aufweisen. Aus der Turbulenzmodellstudie geht hervor, dass diese

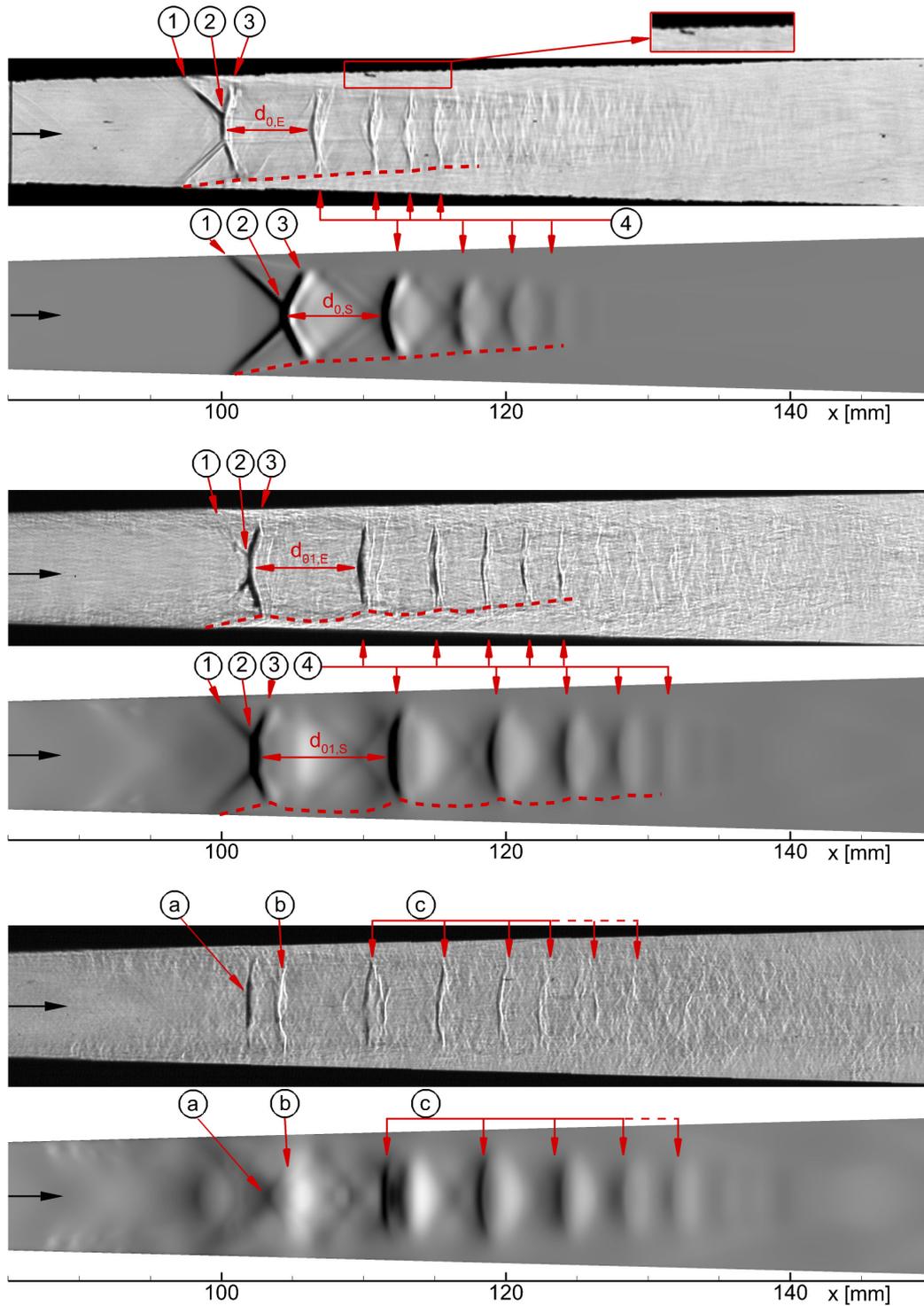


Abbildung 2.45: Experimentelle und numerische Schlierenbilder für verschiedene Spaltweiten
 Oben: Konfiguration ohne Spalt
 Mittig: Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite
 Unten: Konfiguration mit $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite

beiden Faktoren nur in Verbindung mit der Ausbildung ausgeprägter Eckenablösungen auftreten (siehe Abb. 2.19 und 2.21). Da die spaltbehaftete Simulation ebenso Eckenablösungen ausbildet (siehe Abb. 2.44), wird dieser Zusammenhang nochmals bestätigt. Indirekt kann dies auch als Indiz dafür verstanden werden, dass die spaltfreie Konfiguration im Experiment keine Eckenablösungen ausbildet, da sowohl Experiment als auch Simulation eine nahezu gerade Scherschicht mit kurzen Überschallsegmenten ausbildet. Das Experiment mit einer Spaltweite von $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ zeigt ein gänzlich verändertes Stoßsystem. Statt eines schiefen Verdichtungsstoßes mit einer Machreflexion auf der Kanalachse ist nur noch ein einzelner vertikaler Stoß (a) zu erkennen. Kurz darauf folgt eine scharfe, stoßartige Expansion (b). Stromab sind vier bis sechs weitere gerade Stöße zu erkennen (c). Ähnliche Elemente sind dem Simulationsergebnis zu entnehmen, jedoch sind diese stark verschmiert. Um auszuschließen, dass dies durch eine mangelhafte räumliche Diskretisierung hervorgerufen wird, wurde eine weitere Simulation durchgeführt. Das Rechengebiet wurde auf den Bereich zwischen $x = 60 \text{ mm}$ bis $x = 280 \text{ mm}$ begrenzt und mit $12 \cdot 10^6$ Zellen aufgelöst. Die Randbedingungen für Ein- und Auslass wurden aus der vorangegangenen Simulation extrahiert. Eine Momentanaufnahme ist in Abb. 2.46 dargestellt.

Das erste Schlierenbild zeigt eine ebenso verschwommene Struktur des Pseudo-Stoßsystems. Der erste Stoß (1) erscheint etwas ausgeprägter, da der approximierter Gradient einer diskretisierten Sprungfunktion bei erhöhter Auflösung zunimmt. Stromab ist ein zweiter Stoß (2) sowie eine starke Expansion (3) zu erkennen. Der Einfluss des Bypass-Massenstroms (4) stromauf des ersten Stoßes ist ebenso deutlich erkennbar.

Das zweite und dritte Schlierenbild zeigt den lokalen Dichtegradienten auf der vertikalen bzw. horizontalen Symmetrieebene. Der Bypass-Massenstrom initiiert einen ersten schwachen Shocktrain (a). Dieser entsteht periodisch aufgrund einer auftretenden Kelvin-Helmholtz-Instabilität (siehe Kapitel 2.4.3) und schwimmt anschließend stromab aus dem Stoßsystem. Der zweite Stoß (2) im ersten Bild tritt folglich auch nur periodisch auf. Etwas weiter stromab beginnt der eigentliche Shocktrain (b). Da die Stöße von der Seitenwand kommen, verschwindet der schräge Anteil der Stöße durch die Integration in z -Richtung. Stattdessen sind nur leicht dunklere Regionen zu erkennen. Nur dort, wo es zur Überlagerung von Stößen oder zu einer Machreflexion kommt, sind deutlich dunklere Strukturen zu erkennen. Die scharfe, stoßartige Expansion im Experiment (b) in Abb. 2.45) wird vermutlich durch einen auf die Grenzschicht fallenden Stoß hervorgerufen. Dieser wird dort als Expansion reflektiert, welche lokal ebenso stark ist wie der einfallende Stoß. Der Vergleich zum lokalen Dichtegradienten zeigt, dass integrierte Dichtegradienten wie experimentelle Schlierenbilder ungeeignet sind, um die interne Struktur dieses stark dreidimensionalen Pseudo-Stoßsystems zu analysieren.

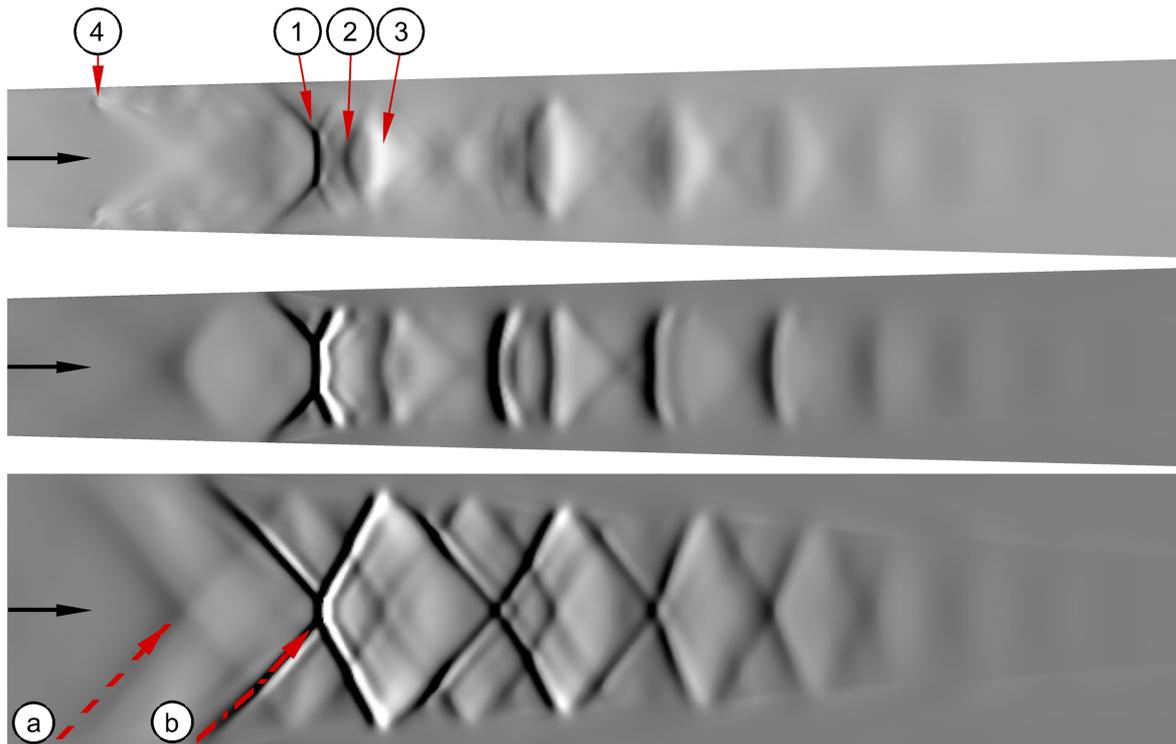


Abbildung 2.46: Schlierenbild mit erhöhter räumlicher Auflösung für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.2 \text{ mm}$ Spaltweite
 Dichtegradient in x -Richtung, Kompressionen=schwarz, Expansionen=weiß
 Oben: Dichtegradient integriert in z -Richtung
 Mittig: Lokaler Dichtegradient auf der vertikalen Symmetrieebene
 Unten: Lokaler Dichtegradient auf der horizontalen Symmetrieebene

2.4.3 Einfluss des Spaltes auf die axiale Stoßoszillation

Die allgemeine Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung ist bereits seit mehreren Jahrzehnten Gegenstand experimenteller und numerischer Untersuchungen. Im Fokus vieler Studien steht die Stoßoszillation, da diese im Bereich der Aerodynamik transsonischer und supersonischer Flugkörper sowohl zu transienten Auftriebs- und Widerstandsbeiwerten als auch zu starken Wechsellasten für nahe gelegene Bauteile führt. KISTLER [74] zeigte bereits 1964 für eine mit $M = 3.01$ angeströmte Stufe, dass sich die Druckschwankungen in der Ablöseblase und die axiale Stoßoszillation aus einem niederfrequenten und einem hochfrequenten Anteil zusammensetzen. Ein ähnliches Verhalten der Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung wurde später auch für andere Konfigurationen nachgewiesen. Dabei unterteilt man die auftretende Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung in drei Grundtypen (siehe Abb. 2.47).

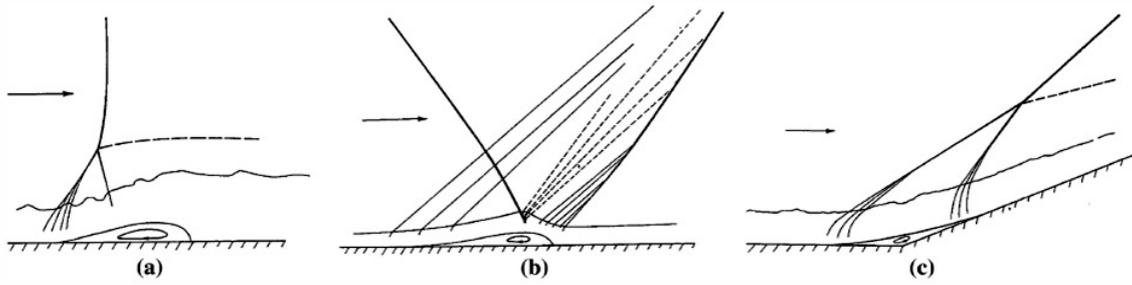


Abbildung 2.47: Schematische Darstellung der drei Grundtypen der Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung nach [54]:

- Ⓐ Auftreffen eines geraden Verdichtungsstoßes auf einer turbulenten Grenzschicht mit anschließender Unterschallströmung
- Ⓑ Auftreffen eines schiefen Verdichtungsstoßes auf einer turbulenten Grenzschicht mit anschließender Überschallströmung
- Ⓒ Schiefer Verdichtungsstoß an einer Rampe

Experimentelle Ergebnisse zur Stoßoszillation eines senkrechten Verdichtungsstoßes (Konfiguration Ⓐ) wurden beispielsweise von MATSUO und KIM [90] veröffentlicht. Ausführliche Messungen zu schrägen Verdichtungsstößen (Konfiguration Ⓑ) finden sich unter anderem bei DUSSAUGE *et al.* [32] und VAN OUDHEUSDEN *et al.* [99]. Der Stoß an einer Rampe (Konfiguration Ⓒ) wurde vor allem für supersonische bis hypersonische Strömungen untersucht (siehe Datenbasis von SETTLES und DODSON [125]). Messungen zur Druckoszillation im Bereich der Ablöseblase finden sich u. a. bei DOLLING und MURPHY [30] sowie DOLLING und OR [31].

In Kanalströmungen tritt meist eine Kombination der vorgestellten Grundtypen auf. Der erste Stoß in einem Pseudo-Stoßsystem gleicht einem schrägen Verdichtungsstoß an einer Rampe (Konfiguration Ⓒ). Der reflektierte Stoß fällt meist schräg auf die (abgelöste) Grenzschicht (Konfiguration Ⓑ), wohingegen die nachfolgenden Stöße bei geringen Vorstoßmachzahlen ($M \lesssim 2$) gerade ausfallen (Konfiguration Ⓐ). Auch hier tritt eine Oszillation auf, die sich aus einer hochfrequenten Komponente und einer niederfrequenten Komponenten zusammensetzt (siehe u. a. [16, 21, 68, 91, 92]).

ADAMS [4] zeigt mittels Direkter Numerischer Simulation (DNS) einer $M=3$ -Rampenströmung, dass die hochfrequente Stoßbewegung am Fuß der Rampe auf die Burst-Events der Grenzschicht zurückzuführen ist und sich somit invers zur charakteristischen Zeitskala τ_δ der Grenzschicht verhält. Die charakteristische Zeitskala der niederfrequenten Oszillation ist in der Größenordnung von $\tau = \mathcal{O}(10 \cdot \delta/U_\infty \dots 100 \cdot \delta/U_\infty)$ und damit ein bis zwei Größenordnungen größer als die charakteristische Frequenz der Grenzschicht mit $\tau_\delta = \delta/U_\infty$ [54]. LOGINOV *et al.* [87] konnten eine langsame Stoßbewegung erstmals auch in einer LES nachweisen. Aufgrund des hohen Rechenaufwands konnten jedoch

nicht mehrere Zyklen berechnet werden, weshalb der Nachweis einer tatsächlichen Stoßoszillation infrage gestellt werden kann.

Als Ursache für die langsame Stoßoszillation werden sowohl die Strömungszustände vor als auch nach dem Stoß genannt. Ebenso wird dem Stoß ein intrinsisches Tiefpassfilterverhalten zugesprochen. In Anbetracht der Tatsache, dass eine langsame Stoßbewegung trotz konstanter Randbedingungen numerisch reproduziert werden konnte, erscheint diese Überlegungen jedoch unplausibel. PIPONNIAU *et al.* [108] stellen ein neues Modell vor, das in erster Linie die Form der Ablöseblase sowie den Entrainment-Eigenschaften der überströmenden Schicht verantwortlich macht. Neueste numerische Untersuchungen einer Rampenströmung von GRILLI *et al.* [51] unterstützen die Hypothese, dass die langsamen Frequenzen auf die direkte Interaktion des Stoßes mit der Ablösung zurückzuführen sind. Im Folgenden soll ein weiterer möglicher Mechanismus vorgestellt werden, der die Stoßoszillation in Experimenten beeinflussen kann.

Kelvin-Helmholtz-Instabilität

Wie bereits erwähnt, wurden die spaltbehafteten Konfigurationen instationär berechnet, da kein stationäres Ergebnis erzielt werden konnte. Abbildung 2.48 zeigt eine Momentaufnahme der lokalen axialen Geschwindigkeit u auf der Schnittebene B-B, die direkt entlang der Mitte des Spalts verläuft (siehe auch Abb. 2.40 und Abb. 2.41). Die schwarze Linie im Kanal entspricht der auf die Schnittebene projizierten oberen Kanalwand und unterteilt in Spalt- und Kanalströmung. In der Nähe des engsten Querschnitts werden aufgrund der maximalen Massenstromdichte $\rho^* \cdot u^*$ und des hohen negativen Druckgradienten in der Kernströmung auch die höchsten Strömungsgeschwindigkeiten innerhalb des Spalts erreicht. Aufgrund der Reibung im Spalt verzögert sich die Strömung zw. $x = 10 \text{ mm}$ und $x = 20 \text{ mm}$ von $u \approx 150 \text{ m/s}$ auf $u \approx 40 \text{ m/s}$ und der größte Teil

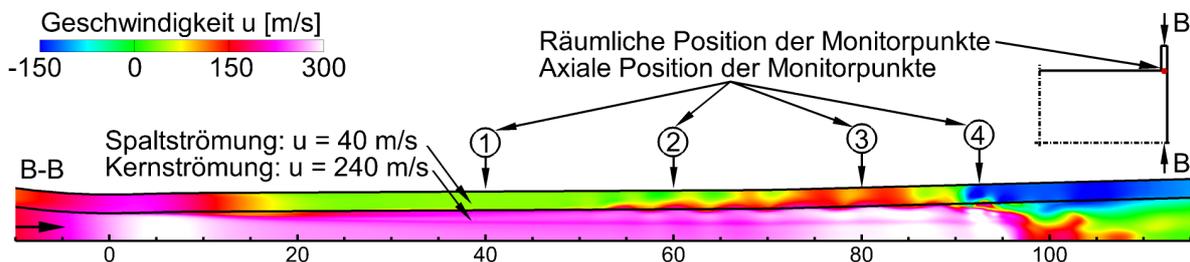


Abbildung 2.48: Momentaufnahme der axialen Geschwindigkeit u auf der Schnittebene B-B
Eingezeichnet ist die axiale und räumliche Position von vier Monitorpunkten. Der zeitliche Druckverlauf der Monitorpunkte ist in Abb. 2.49 (links) abgebildet.
Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Randbedingungen sind in Abb. 2.17 gegeben.

des Bypass-Massenstroms strömt zurück in den Kanal (siehe auch Kapitel 2.4.1). Die Geschwindigkeit der Grenzschicht im Kanal beträgt hingegen $u \approx 240 \text{ m/s}$, weshalb die Scherschicht zwischen Kanal- und Spaltströmung stromab eine Kelvin-Helmholtz-Instabilität ausbildet. Diese ist deutlich erkennbar im Bereich $x = 50 \text{ mm}$ bis $x = 90 \text{ mm}$. Um den Einfluss der Kelvin-Helmholtz-Instabilität auf die Stoßoszillation zu untersuchen, wurde der lokale Druck entlang des Kanals zwischen Spalt- und Kernströmung über mehrere Monitorpunkte aufgenommen. In Abb. 2.48 sind vier repräsentative Monitorpunkte ($x = 40 \text{ mm}$, $x = 60 \text{ mm}$, $x = 80 \text{ mm}$ und $x = 92.5 \text{ mm}$) eingezeichnet. Der aufgenommene Druckverlauf ist in Abb. 2.49 links dargestellt, eine FFT der Signale ist rechts abgebildet. Der gewählte physikalische Zeitschritt der URANS-Simulationen beträgt $\Delta t = 10^{-7} \text{ s}$, sodass, entsprechend dem Nyquist-Shannonschen Abtasttheorem, Frequenzen bis zu $f_{max} = 5 \text{ MHz}$ aufgelöst werden können. Die Aufzeichnung des Drucks erfolgte erst nachdem ein quasi-stationärer Zustand erreicht wurde. Anschließend wurden weitere $2.3 \cdot 10^4$ Zeitschritte bzw. $\Delta t = 2.3 \cdot 10^{-3} \text{ s}$ berechnet, weshalb die minimal aufgelöste Frequenz $f_{min} = 430 \text{ Hz}$ beträgt.

Die Kelvin-Helmholtz-Instabilität ist erstmals anhand des Druckverlaufs bei $x = 40 \text{ mm}$ erkennbar (Monitorpunkt 1). Der Druck ist nahezu konstant, allerdings treten schwache Oszillationen auf (siehe Ausschnitt), die mehr oder weniger zufällig entstehen und wieder abklingen. Dennoch zeigt die FFT-Analyse des Drucksignals ein deutlich ausgeprägtes Maximum im Bereich von $f = 17 - 23 \text{ kHz}$. Das auftretende niederfrequente Signal in Abb. 2.49 ($f < 2 - 3 \text{ kHz}$) ist mit Vorsicht zu beurteilen, da die minimale Frequenz, wie oben bereits erwähnt, $f_{min} = 430 \text{ Hz}$ beträgt.

Der nächste Monitorpunkt befindet sich 20 mm stromab und weist bereits, wie man sowohl anhand des Drucksignals als auch am Strömungsfeld selbst erkennen kann, deutlich ausgeprägte Kelvin-Helmholtz-Wirbel auf. Die FFT-Analyse zeigt auch hier ein ausgeprägtes Maximum im Bereich von $f = 17 - 23 \text{ kHz}$ sowie weitere lokale Maxima bei $f \approx 38 \text{ kHz}$ und $f \approx 57 \text{ kHz}$. Der niederfrequente Anteil hingegen ist relativ zur Maximalamplitude abgeklungen. Dasselbe gilt für den Monitorpunkt 3.

Der Monitorpunkt 4 befindet sich direkt an der Stoßposition. Das Drucksignal an dieser Stelle wird ebenso von der Kelvin-Helmholtz-Instabilität kommend aus dem Überschallteil der Düse wie von der Rückströmung aus dem Unterschallbereich beeinflusst. Die FFT-Analyse verzeichnet daher einen deutlichen Anstieg der niederen Frequenzen im Bereich von $f \approx 5 \text{ kHz}$.

Anhand der Drucksignale ist zu erkennen, dass kleine Unregelmäßigkeiten im Druckverlauf auftreten, die mit der Strömung stromab getragen werden und bis zur Stoßposition nachweisbar sind (siehe (a) und (b)). Andere Druckspitzen ((c) und (d)) entstehen durch die Interaktion mit dem Pseudo-Stoßsystem.

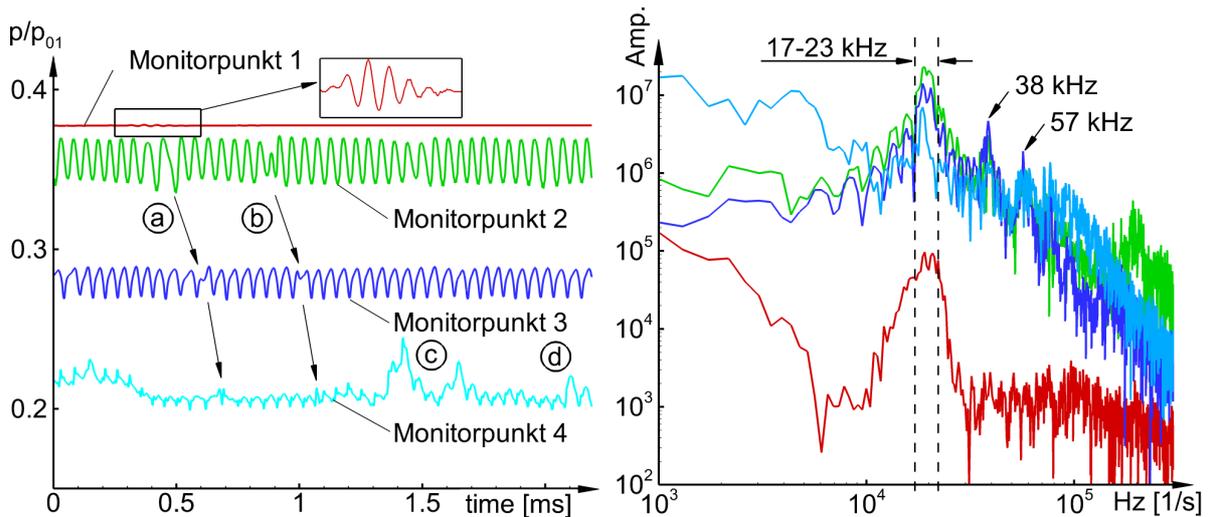


Abbildung 2.49: Entdimensionierter Druckverlauf für die in Abb. 2.48 dargestellten Monitorpunkte (links) und eine FFT-Analyse der Drucksignale (rechts)

Rückwirkung auf die Stoßoszillation

Um die Auswirkungen dieser Druckoszillation auf das Stoßsystem zu untersuchen, wurde die Machzahl für weitere Monitorpunkte auf der Symmetrieachse aufgezeichnet. Die Position der Monitorpunkte kann Abb. 2.50 (links) entnommen werden, der dazugehörige Machzahlverlauf ist rechts abgebildet.

Monitorpunkt 5 ist immer stromauf des Pseudo-Stoßsystems und die lokale Machzahl oszilliert mit derselben Frequenz wie der statische Druck zwischen $M = 1.56$ und $M = 1.68$. Dies würde im stationären, spaltfreien Fall einer axialen Stoßverschiebung um $\Delta x \approx 15 \text{ mm}$ gleichkommen. Hier ist die variierende Machzahl allerdings dem Massenzu- bzw. Abstrom über die Spaltströmung geschuldet. Die Oszillation ist weiter-

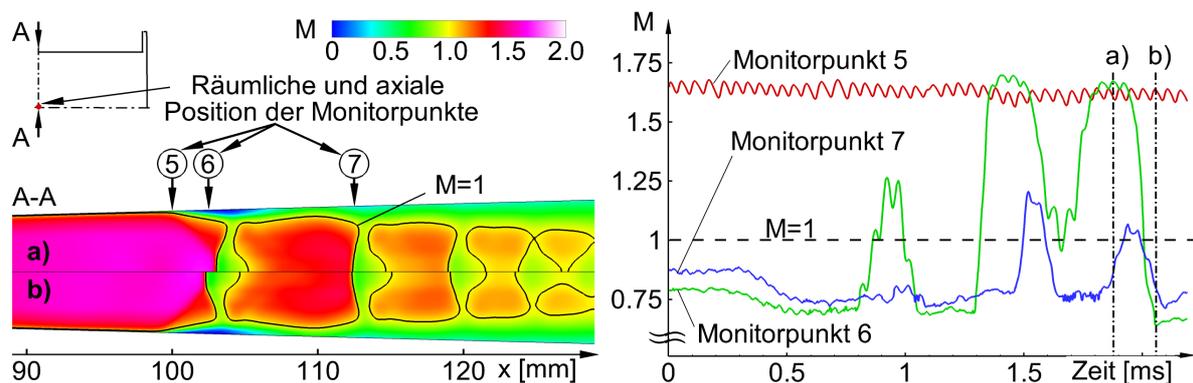


Abbildung 2.50: Links: Machzahlverteilung auf der Symmetrieebene im Bereich des Stoßsystems für die Zeitpunkte a) und b) sowie die axiale Position der Monitorpunkte 5-7 Rechts: Machzahlverlauf der einzelnen Monitorpunkte (rechts).

hin sehr hochfrequent. Der kurze Impulszuwachs reicht nicht aus, um die nachfolgende Rezirkulationsblase signifikant stromab zu schieben, da die Trägheit der rezirkulierenden Masse dämpfend entgegenwirkt. Dennoch oszilliert der Winkel des ersten schrägen Verdichtungsstoßes mit der Vorstoßmachzahl und die nachfolgende Ablöseblase wird stetig angeregt.

Monitorpunkt 6 befindet sich anfangs kurz nach der Machreflexion. Die schwache Oszillation der Kelvin-Helmholtz-Wirbel ist auch hier noch nachweisbar. Im weiteren zeitlichen Verlauf folgt eine langsame, aber stärkere Stoßoszillation und der Monitorpunkt befindet sich kurzzeitig stromauf der Machreflexion. Die maximale Auslenkung des Stoßes beträgt etwa $\Delta x \approx 1 - 2 \text{ mm}$, wie der Abb. 2.50 (links) für die Zeitpunkte a) und b) zu entnehmen ist. Diese Auslenkung stimmt für den berechneten Zeitraum gut mit den Experimenten überein. Betrachtet man die Stoßposition über einen längeren Zeitraum ($\Delta t = \mathcal{O}(10^0 \dots 10^1) \text{ s}$), so können sowohl für die spaltfreie als auch für die spaltbehaftete Konfiguration größere Auslenkungen ($\Delta x \approx 3 - 4 \text{ mm}$) der Stoßposition beobachtet werden. Es gibt jedoch weder in der Zuströmung noch in der Reaktorströmung Anhaltspunkte in den Messdaten, die eine derartige axiale Amplitude erklären können. Eine denkbare Erklärung wäre die Superposition mehrerer Effekte: die turbulenzinduzierte hochfrequente Stoßoszillation, die niederfrequente Oszillation, die Kelvin-Helmholtz-Instabilität sowie die Vibration des Konus im zweiten engsten Querschnitt. Abbildung 2.51 zeigt die minimale Stoßposition (rot) und maximale Stoßposition (grün) in einem Zeitintervall von $\Delta t = 0.2 \text{ s}$ für die Druckverhältnisse $p_{02}/p_{01} = 0.70$ und $p_{02}/p_{01} = 0.60$. Die Amplitude für die jeweiligen Druckverhältnisse beträgt $d_{07} = 2.9 \text{ mm}$ bzw. $d_{06} = 4.7 \text{ mm}$.

Der Monitorpunkt 7 befindet sich stromab des zweiten Verdichtungsstoßes. Auch hier sind zwei signifikante Ausschläge zu erkennen, die der Stoßverschiebung von Monitorpunkt 6 mit einem kurzen zeitlichen Versatz folgen. Daraus geht hervor, dass die Ursache

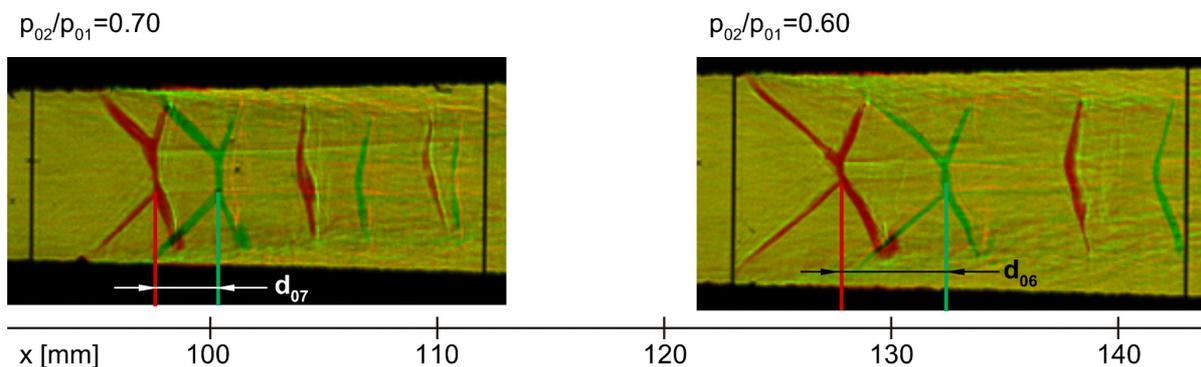


Abbildung 2.51: Minimale (rot) und maximale (grün) experimentelle Stoßposition für die Druckverhältnisse $p_{02}/p_{01} = 0.70$ und $p_{02}/p_{01} = 0.60$ in einem Beobachtungszeitintervall von $\Delta t = 0.2 \text{ s}$

für die Stoßverschiebung ihren Ursprung stromauf von Monitorpunkt 7 besitzt. Einer Videoanalyse lässt sich entnehmen, dass die Interaktion des Stoßes mit der Ablöseblase zu einer plötzlichen Verschiebung des ersten Stoßes führt, wohingegen die folgenden Stöße mit einer kurzen Verzögerung auf die neue Stoßposition reagieren. Der zeitliche Versatz der Stoßbewegung führt dazu, dass das gesamte Pseudo-Stoßsystem sich ziehharmonikaartig axial ausdehnt und zusammenzieht. Dieses Verhalten wird durch experimentelle Schlierenvideos bestätigt.

Fazit

Die berechnete Grenzschichtdicke vor dem Pseudo-Stoßsystem ist $\delta = 1.4 \text{ mm}$, die Strömungsgeschwindigkeit außerhalb der Grenzschicht beträgt $u_\infty = 450 \text{ m/s}$. Daraus ergibt sich eine charakteristische Zeitskala der Grenzschicht von $\tau_\delta = \delta/U_\infty \approx 3.1 \cdot 10^{-6} \text{ s}$ bzw. eine charakteristische Frequenz $f_\delta \approx 320 \text{ kHz}$. Diese Frequenz kann von (U)RANS-Simulationen per Definition nicht wiedergegeben werden, da die turbulenten Schwankungen nicht aufgelöst, sondern zeitlich gemittelte Werte berechnet werden. Dahingegen sind URANS-Simulationen bei ausreichender räumlicher und zeitlicher Diskretisierung in der Lage, Instabilitäten wiederzugeben. Die Anregung des Pseudo-Stoßsystems durch die Kelvin-Helmholtz-Instabilität erfolgt mit einer charakteristischen Zeitskala von $\tau_{KHI} \approx (15-20) \cdot \tau_\delta$ und liegt damit, wie von HADJADJ und DUSSAUGE [54] berichtet, im oberen Bereich der niederfrequenten Stoßoszillation. Weiterhin geben die Simulationen eine Stoßbewegung wieder, die etwa eine Größenordnung langsamer ist und daher den unteren Bereich der niederfrequenten Stoßoszillation trifft. Die berechnete physikalische Zeit reicht aber nicht aus, um für den unteren Bereich eine tatsächliche Oszillation zu bestätigen. Der Nachweis wäre jedoch hinsichtlich des von PIPONNIAU *et al.* [108] vorgestellten Modells der „Entrainment-induzierten niederfrequenten Stoßoszillation“ sehr interessant, da dieser Vorgang von der URANS-Simulation nicht abgebildet werden kann. Tritt in den Simulationen dennoch eine niederfrequente Stoßoszillation auf, so könnte die Ablöseblase auch als Feder-Masse-Dämpfer-System interpretiert werden. Ein experimenteller Nachweis wäre über die gezielte Anregung des Pseudo-Stoßsystems durch Druckpulse und der Identifikation von Eigenfrequenzen möglich. Selbiges könnte unter hohem Rechenaufwand auch numerisch erzielt werden.

Der hier vorgestellte Mechanismus der spaltinduzierten Stoßoszillation konnte aufgrund der begrenzten Aufnahmefrequenz der Kulite-Sensoren ($f_{max} = 10 \text{ kHz}$) experimentell noch nicht nachgewiesen werden. Dies wäre allerdings hinsichtlich der Interpretation bestehender Daten von großem Interesse, da dieser Mechanismus auch in anderen Kanälen auftreten kann und somit ggf. Messdaten zur Stoß-Grenzschicht-Wechselwirkung (bzw. zur Stoßoszillation) infrage gestellt werden müssen.

2.4.4 Einfluss auf das Symmetrieverhalten

Neben der axialen Stoßoszillation wird bei Pseudo-Stoßsystemen häufig auch eine laterale Stoßbewegung oder das einseitige Anlegen des Shocktrains an eine Kanalwand beobachtet. Beispiele zu diesem Symmetriebruch finden sich unter [17, 18, 21, 68, 102–104, 151]. Dieses Verhalten konnte auch an einem Ersatzkanal am DLR Köln beobachtet werden [41, 42]. Die Geometrie der ersten Lavaldüse gleicht dem hier vorgestellten Kanal, hat jedoch einen konstanten Öffnungswinkel von $\alpha_{tot} = 3^\circ$. Des Weiteren wurden Plexiglasseitenfenster verwendet, die bündig mit den Konturleisten verschraubt werden können und somit spaltfrei sind. Abbildung 2.52 zeigt eine zeitliche Abfolge von Schlierenbildern des untersuchten Pseudo-Stoßsystems. Die Ruhebedingungen am Einlass des Kanals sind $p_{01} = 4.8 \text{ bar}$ und $T_{01} = 294 \text{ K}$, das Druckverhältnis ist $p_{02}/p_{01} = 0.54$ und die Vorstoßmachzahl beträgt $M \approx 2.1$. Das erste Bild zeigt ein an die obere Kanalwand angelegtes Stoßsystem. Die rote Linie kennzeichnet in allen Bildern die axiale Position des oberen, schrägen Verdichtungsstoßes zum Zeitpunkt $t = 0.0 \text{ ms}$. Die Symmetrieachse ist gelb eingezeichnet. Innerhalb von $\Delta t = 0.8 \text{ ms}$ ist eine deutliche Stromabverschiebung des ersten Stoßes um $\Delta x = 3 \text{ mm}$ zu erkennen. Zum Zeitpunkt $t = 1.6 \text{ ms}$ verschiebt sich der Stoß zuerst an einer Kanalwand stromauf und ist zum nächsten Zeitpunkt wieder an der Ausgangsposition. Nach einer erneuten Stromabverschiebung neigt sich der Shocktrain zur unteren Kanalwand. Der Seitenwechsel erfolgte während der Experimente stochastisch oder gar nicht. Eine Vorzugsrichtung konnte nicht identifiziert werden.

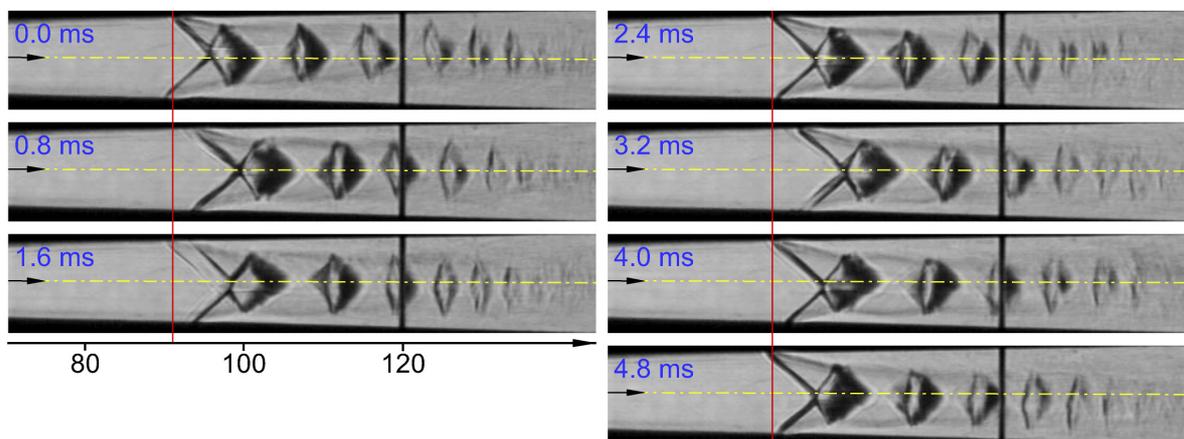


Abbildung 2.52: Zeitserie eines asymmetrisch anliegenden Pseudo-Stoßsystems in einem Kanal mit Plexiglasseitenfenstern (spaltfrei) [42]

Bei den anschließenden Untersuchungen am Kanal mit Quarzglasseitenfenstern trat dieser Symmetriebruch des Pseudo-Stoßsystems auch bei gleichen Betriebsbedingungen nicht mehr auf. Erst als die spätere spaltfreie Konfiguration untersucht wurde, zeigte sich

vorzugsweise bei hohen Vorstoßmachzahlen ein asymmetrisches Verhalten. In Abb. 2.53 sind zwei experimentelle Schlierenbilder für die spaltfreie Konfiguration und die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite dargestellt. Die Ruhebedingungen am Einlass des Kanals sind $p_{01} = 6 \text{ bar}$ und $T_{01} = 300 \text{ K}$, das Druckverhältnis ist $p_{02}/p_{01} = 0.6$ und die Vorstoßmachzahl beträgt $M \approx 1.9$. Anhand des Verlaufs der Scherschicht im Shocktrain (rote Linie) zeigt sich, dass sich das Pseudo-Stoßsystem im spaltfreien Fall deutlich an die obere Kanalwand anlegt.

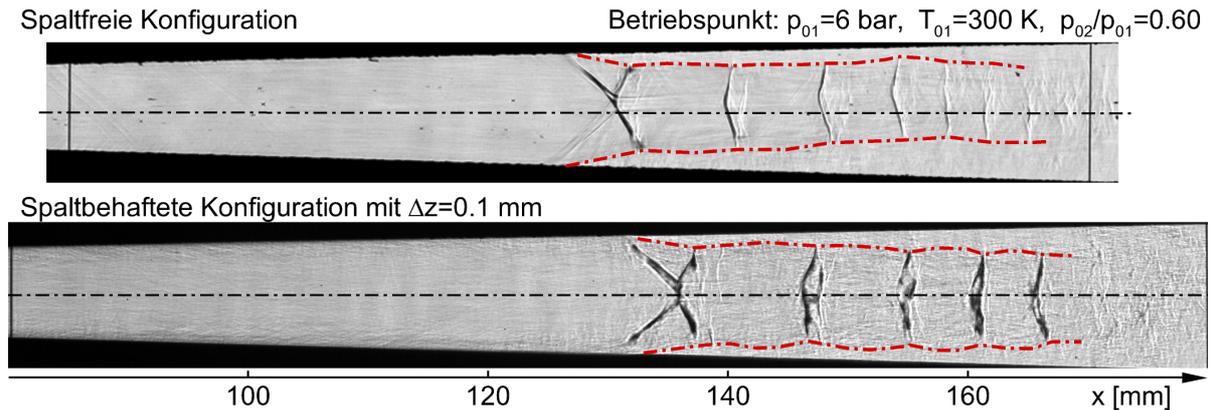


Abbildung 2.53: Experimentelle Schlierenbilder für die spaltfreie Konfiguration mit asymmetrischem Pseudo-Stoßsystem (oben) und für die Konfiguration mit $\Delta z = 0.1 \text{ mm}$ Spaltweite und symmetrischem Pseudo-Stoßsystem (unten). Die Ruhebedingungen am Einlass des Kanals sind $p_{01} = 6 \text{ bar}$ und $T_{01} = 300 \text{ K}$, das Druckverhältnis ist $p_{02}/p_{01} = 0.6$ und die Vorstoßmachzahl beträgt $M \approx 1.9$.

Diese Beobachtung legt nahe, dass der spaltinduzierte Bypass-Massenstrom zur Stabilisierung des Stoßsystems in der Kanalmitte beiträgt.

XIAO *et al.* [151] zeigen anhand von RANS-Simulationen, dass in 2-D Strömungen mit konstanten Randbedingungen drei verschiedene Lösungen für ein Pseudo-Stoßsystem erzielt werden können: eine symmetrische sowie zwei asymmetrische Konfigurationen (siehe Abb. 2.54). 2-D Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit ergaben, dass die symmetrische Lösung für die hier untersuchte Geometrie vor allem bei höheren Machzahlen instabil ist und nur durch eine geeignete Initialisierung sowie hohe numerische Zeitschritte erreicht werden kann. Stellt sich einmal eine asymmetrische Lösung ein, so bleibt das Stoßsystem stabil zu einer Kanalwand geneigt und kann nur durch eine starke Störung (Druckpuls an der Auslassrandbedingung) auf die andere Seite umschlagen. Dabei wird das Stoßsystem kurzfristig stromauf verschoben, wodurch die Vorstoßmachzahl abnimmt und sich vorübergehend eine symmetrische Lösung einstellt. Klingt der Druckpuls ab, so steigt die Vorstoßmachzahl wieder an und eine asymmetrische Lösung stellt sich an der ursprünglichen Stoßposition ein.

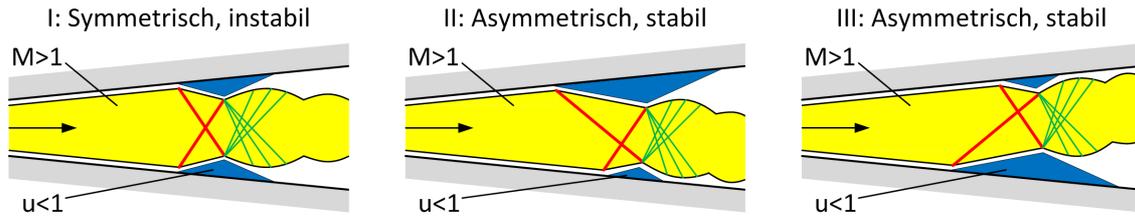


Abbildung 2.54: Symmetrische und asymmetrische Lösungen für ein 2-D Pseudo-Stoßsystem

Im spaltfreien Experiment hingegen sind mehrere Faktoren denkbar, die einen Seitenwechsel hervorrufen können. Einerseits tritt bei Pseudo-Stoßsystemen sowohl eine hochfrequente als auch eine niederfrequente Oszillation auf (siehe Kapitel 2.4.3). Beides stellt eine Störung des Pseudo-Stoßsystems dar. Andererseits ist eine Kommunikation der oberen und unteren Ablöseblase über die Seitenwand denkbar. Da bisher weder die Ursache für den Symmetriebruch noch die maßgebenden Parameter vollständig geklärt sind, ist hier eine adäquate Aussage über die Ursache der lateralen Oszillation im Experiment nicht möglich.

Im Gegensatz zu der spaltfreien Konfiguration, in der die Neigung des Pseudo-Stoßsystems durch die Größe der Ablöseblasen an den Kanalwänden bestimmt ist, tritt im spaltbehafteten Fall eine massive Eckenablösung auf. Der stoßinduzierte Druckgradient führt hier, wie in Kapitel 2.4.1 beschrieben, zu einem Bypass-Massenstrom durch den Spalt in das stromaufgelegene Überschallgebiet und leitet dort das Pseudo-Stoßsystem durch einen aus der Ecke kommenden Verdichtungsstoß ein. Dieser Mechanismus ist in gewisser Weise selbstregulierend, da sich Größe und Form des Rückströmgebietes in Abhängigkeit des Bypass-Massenstroms im Spalt ausbilden. Der Bypass-Massenstrom wiederum wird vom Druckgradienten über den schrägen Verdichtungsstoß bestimmt und ist somit von der Stoßposition sowie der Form und Größe des Rückströmgebietes abhängig.

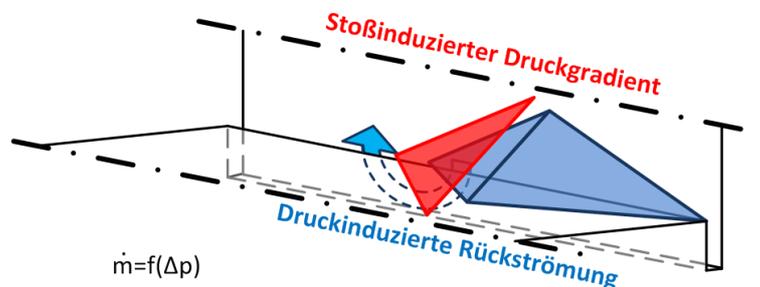


Abbildung 2.55: Selbstregulierende Stoßposition durch den Bypass-Massenstrom in einer spaltbehafteten Konfiguration

Um dies für die untersuchte Geometrie zu überprüfen, wurden weitere Simulationen für einen axialen Ausschnitt des Kanals ohne Symmetriestandbedingungen durchgeführt. Das Rechengebiet beginnt bei $x = 40 \text{ mm}$, da an diesem Punkt im Falle der spaltbehafteten Konfiguration noch stationäre Einlassrandbedingungen angenommen werden können (siehe Kapitel 2.4.3). Die Geschwindigkeitskomponenten sowie Druck, Temperatur und die turbulenten Größen k und ω wurden in beiden Fällen an dieser Stelle den vorangegangenen Simulationen entnommen. Das Rechengebiet endet vor dem doppelt-divergenten Teil bei $x = 281.931 \text{ mm}$ und liegt weit stromab, um den Einfluss der dort gesetzten Druckrandbedingung gering zu halten. Die spaltfreie Konfiguration wurde mit $4.5 \cdot 10^6$ Zellen aufgelöst, die spaltbehaftete Variante ($\Delta z = 0.1 \text{ mm}$) hingegen mit $12.5 \cdot 10^6$ Zellen. Die hohe Auflösung für die spaltbehaftete Variante ist auf die nötige axiale Diskretisierung im Überschallteil zur Abbildung der Kelvin-Helmholtz-Instabilität und auf die zur Abbildung des Spalts nötige wandnahe Verfeinerung zurückzuführen (siehe auch Abb. 2.16). Die axiale Auflösung im Bereich des Stoßsystems ist in beiden Fällen identisch.

Abbildung 2.56 a) zeigt das Pseudo-Stoßsystem für die spaltfreie Konfiguration. Dargestellt ist die lokale Machzahl auf der Symmetrieebene und eine perspektivische Ansicht des Kanals. Die gelbe Iso-Fläche zeigt die Struktur des Überschallgebiets und entspricht Machzahl $M = 1$. Die blaue Iso-Fläche stellt Rückströmgebiete dar. Der Shocktrain ist deutlich zur unteren Kanalwand geneigt. Die Ablösung der Strömung erfolgt an der oberen Kanalwand über die gesamte Kanaltiefe an derselben x-Position. Stromab legt die Strömung in der Mitte des Kanals wieder an, wohingegen sich die Rezirkulationsgebiete in den Ecken über eine große Distanz erstrecken. An den Seiten tritt ebenso eine Strömungsablösung auf, wodurch die rechteckige Form des Shocktrains erhalten bleibt. An der unteren Kanalwand löst die Strömung nur kurzfristig ab und ist nach dem ersten Stoß durchgehend anliegend. Die maximale Machzahl beträgt im spaltfreien Fall $M_{max} = 1.92$.

Die Simulation mit Spalten ($\Delta z = 0.1 \text{ mm}$) hingegen bildet in jeder Ecke deutliche Rückströmgebiete aus (siehe Abb. 2.56 b)). Wie bereits vermutet, fixieren diese das Pseudo-Stoßsystem in der Kanalmitte. Der Überschallteil der Düse zeigt, dass sich die Kelvin-Helmholtz-Instabilität phasenverschoben ausbildet und sich daher an Ober- und Unterseite lokale Maxima in der Machzahl ausbilden. Entsprechend oszilliert die Länge des oberen und unteren Teils der Mischungszone nach dem Shocktrain in axialer Richtung. Die Verdrängungsdicke der Rezirkulationsgebiete wirkt der Divergenz des Kanals entgegen, wodurch sich das Stoßsystem bei einer nahezu gleichbleibenden maximalen Machzahl ($M_{max} = 1.96$) um mehrere Millimeter stromab verschiebt. Dies deckt sich mit den experimentellen Beobachtungen.

Der dominante Einfluss der Eckenablösung auf das Symmetrieverhalten des Pseudo-Stoßsystems wirft die Frage auf, ob die Neigung des Pseudo-Stoßsystems durch das gezielte Einbringen kleiner Spalte kontrolliert werden kann. Zu diesem Zweck wurde ein Gitter für den gleichen Kanalausschnitt erstellt, in welchem die Spalte nur an der Kanalunterseite vorhanden sind. Die Simulation wurde mit der spaltfreien Lösung, also einem nach unten geneigten Pseudo-Stoßsystem initialisiert. Wie in Abb. 2.56 c) zu sehen ist, wird der ehemals wandnächste Wert im Spalt vorgeschrieben, weshalb zum Zeitpunkt $t = 0.00 \text{ ms}$ bereits eine Rückströmung im Kanal auftritt. Die Geschwindigkeit beträgt jedoch nur $u_{min} = -5 \text{ m/s}$ und ist daher vernachlässigbar.

Bereits nach $\Delta t = 0.01 \text{ ms}$ tritt aufgrund des hohen Druckgradienten eine deutliche Rückströmung ein. Die Geschwindigkeit im Spalt beträgt bereits $u_{min} = -140 \text{ m/s}$.

Zum Zeitpunkt $t = 0.05 \text{ ms}$ führt der Bypass-Massenstrom bereits in den unteren Ecken zur Deformation des Überschallbereichs (Abb. 2.56 e)). Aus den Ecken laufen schiefe Stöße, die sich jedoch auf der Symmetrieebene noch nicht bemerkbar machen. Anhand der nahezu gleichstarken Expansionen im ersten Überschallsegment kann man erkennen, dass die dominierenden Stöße noch von der oberen und unteren Kanalwand kommen.

Nach weiteren 5 ms sind die Rückströmgebiete auf der Oberseite bereits deutlich kleiner geworden (Abb. 2.56 f)). Die initialen schiefen Verdichtungsstöße schneiden sich auf der Kanalachse und bilden dort eine leichte Machreflexion aus. Die Eckenablösungen in der unteren Kanalhälfte sind bereits stark ausgeprägt und führen zu einer deutlichen Deformation des Stoßsystems. Der hintere Teil des Shocktrains und die Mischungszone sind jedoch noch nahezu unbeeinflusst.

Zum Zeitpunkt $t = 2.00 \text{ ms}$ neigt sich das Stoßsystem wie erwartet deutlich zur oberen Kanalwand (Abb. 2.56 g)). Die Mischungszone folgt mit leichtem zeitlichen Versatz. Die Rückströmgebiete an der oberen Kanalwand sind nahezu vollständig verschwunden, wohingegen die Auswirkungen der massiven Eckenablösungen an der unteren Kanalwand nun auch im Shocktrain deutlich werden. Das erste Überschallsegment zeigt eine deutlich stärkere Beschleunigung in der unteren Hälfte, da diese durch die reflektierte Expansion der eckeninduzierten, schrägen Verdichtungsstöße hervorgerufen wird. Entsprechend nimmt auch die Länge der Segmente leicht zu.

Nach insgesamt $\Delta t = 3.00 \text{ ms}$ ist im Bereich des Pseudo-Stoßsystems keine Änderung mehr erkennbar (Abb. 2.56 g)). Lediglich stromab des Pseudo-Stoßsystems erfolgt noch eine langsame Anpassung der Strömung an die neue Orientierung des Shocktrains.

Der durch die Spalte induzierte Seitenwechsel des Pseudo-Stoßsystems ist in der Simulation nach zwei Millisekunden nahezu vollständig abgeschlossen. Ein Vergleich mit den in Abb. 2.52 vorgestellten Schlierenbildern zeigt, dass die Zeitskala gut mit dem Experiment übereinstimmt.

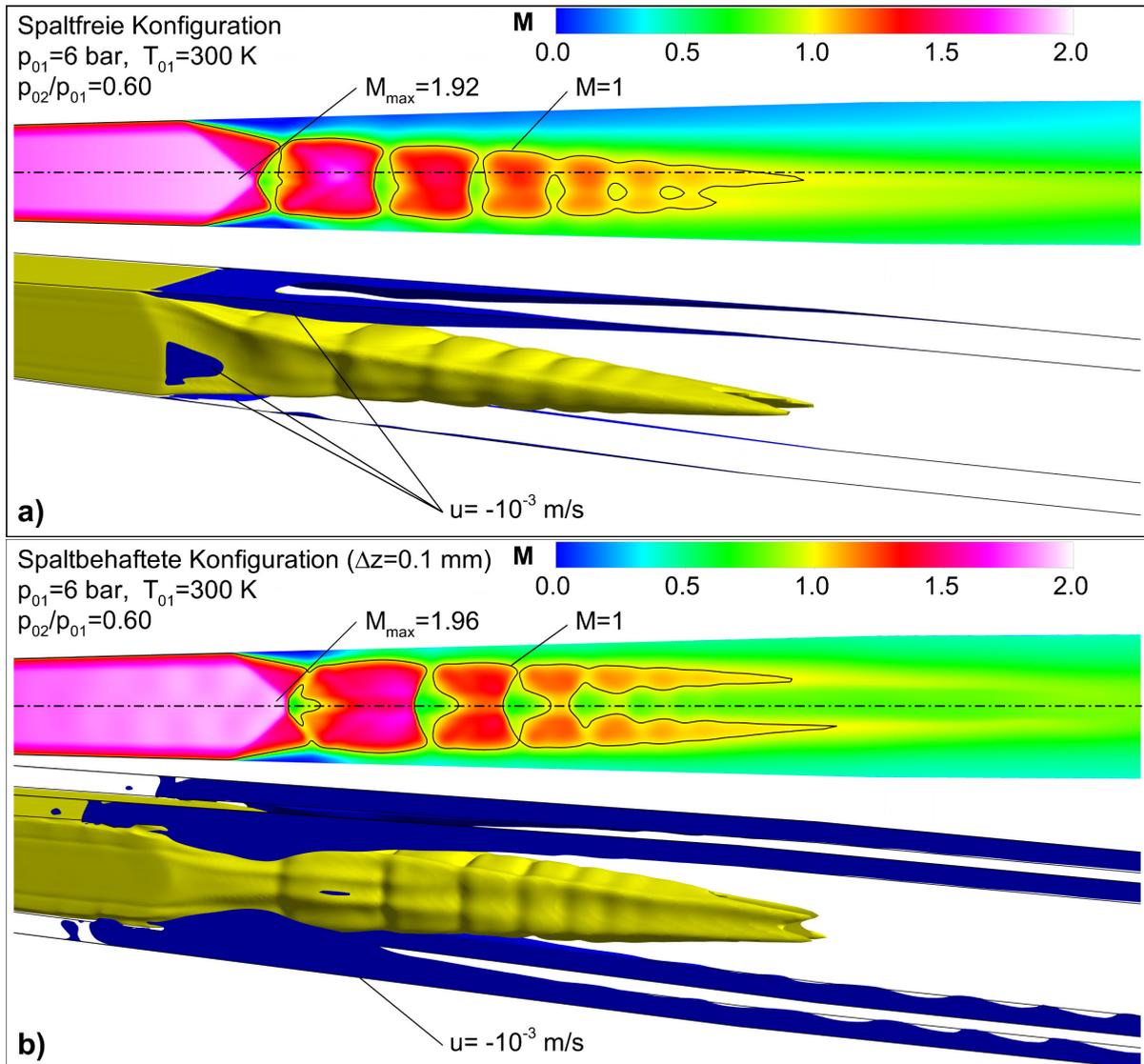
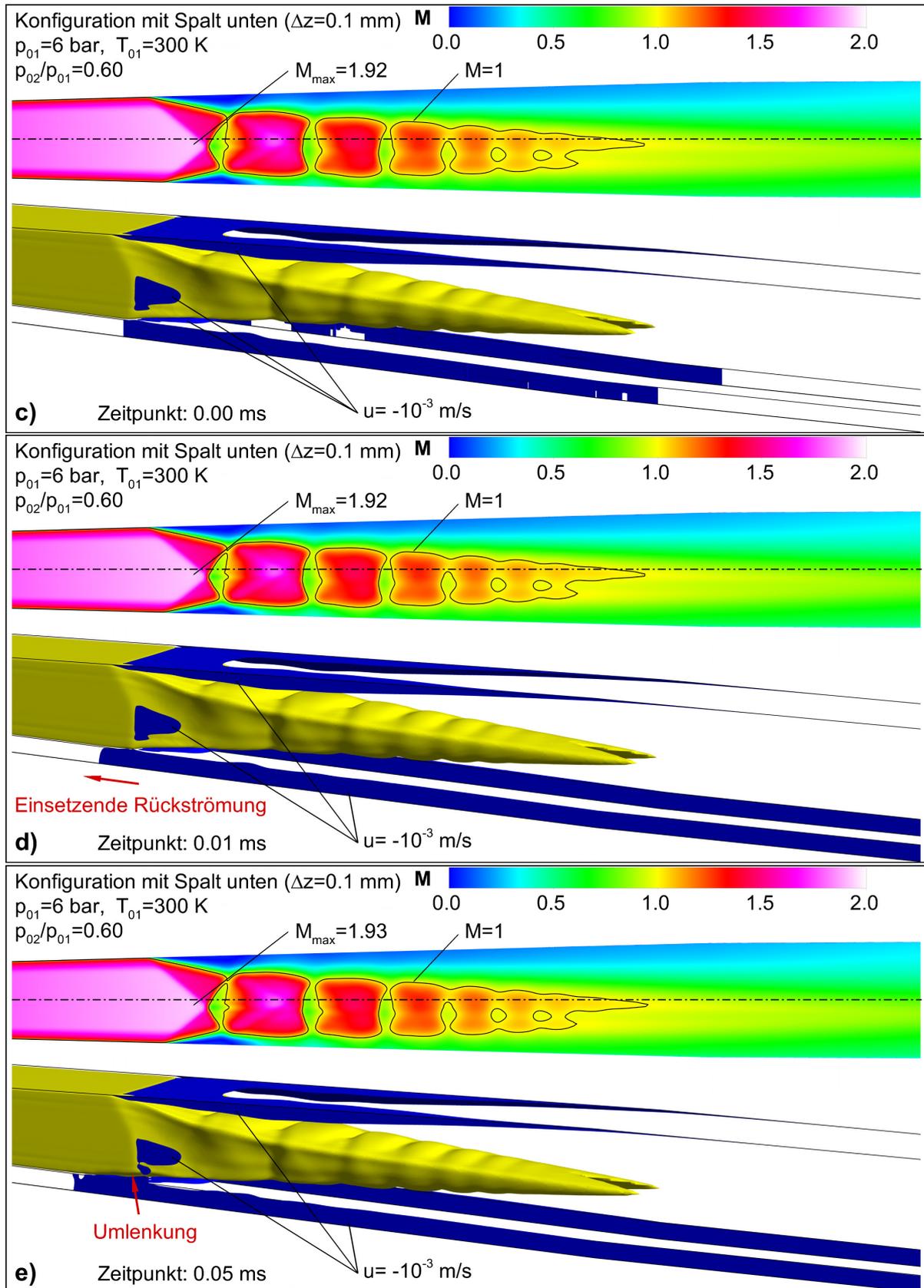
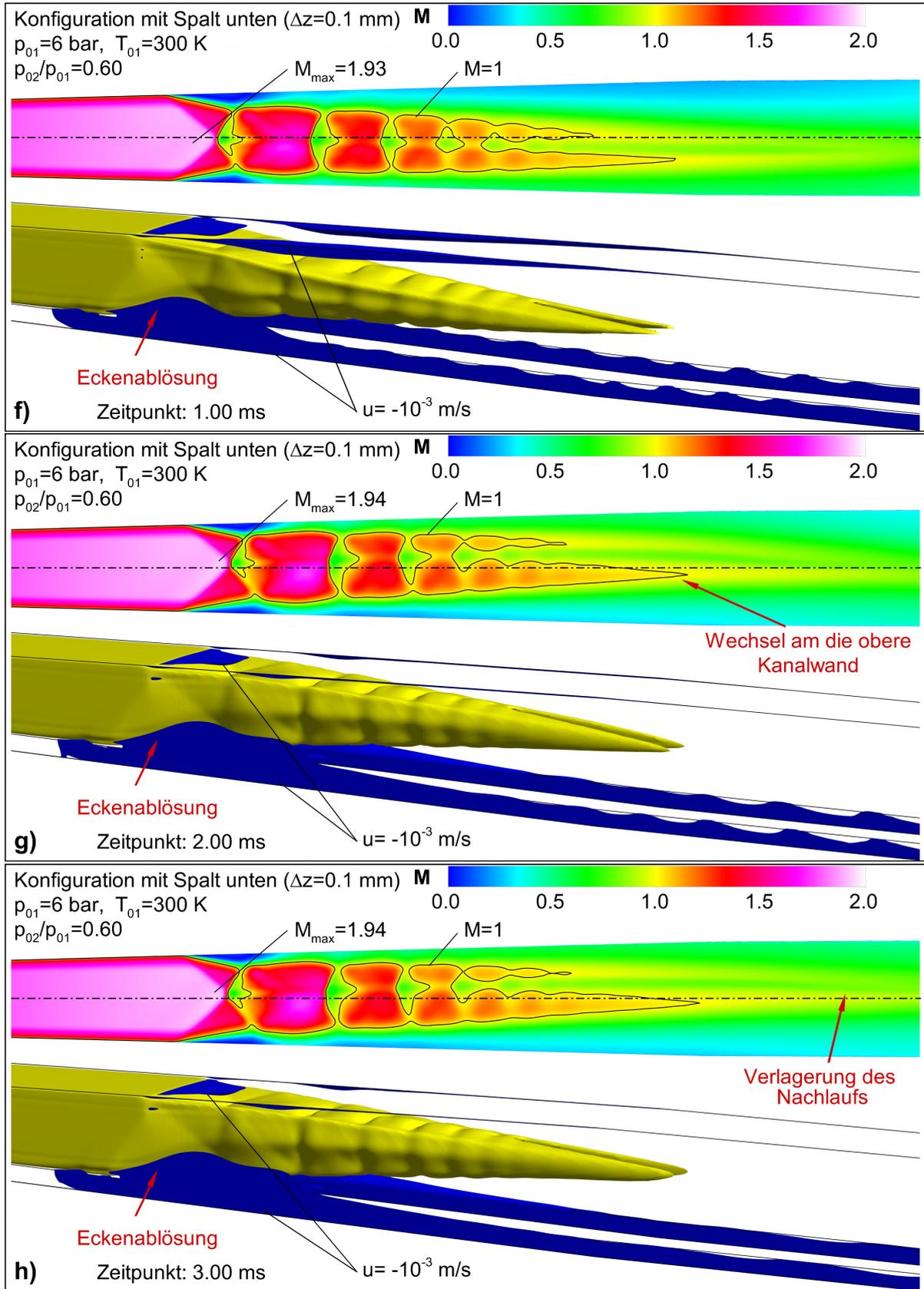


Abbildung 2.56: 3-D Struktur des Pseudo-Stoßsystems für einen vollständigen Kanal ohne Symmetrierandbedingung

Dargestellt ist jeweils die lokale Machzahl auf der Symmetrieebene sowie eine perspektivische Ansicht des Kanals. Die gelbe Iso-Fläche zeigt die Struktur des Überschallgebiets und entspricht Machzahl $M=1$. Die blaue Iso-Fläche zeigt Rückströmgebiete und entspricht einer axialen Geschwindigkeit $u=-10^{-3} \text{ m/s}$. Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Berechnet wurde der Ausschnitt von $x=40 \text{ mm}$ bis $x=281.931 \text{ mm}$. Die Randbedingungen an Ein- und Auslass wurden den vorangegangenen Simulationen für den Basistestfall entnommen.

- a) Asymmetrisches Pseudo-Stoßsystem in einer spaltfreien Konfiguration
- b) Quasi-symmetrisches Pseudo-Stoßsystem in der spaltbehafteten Konfiguration
- c) Asymmetrisches Pseudo-Stoßsystem als Initiallösung für eine Konfiguration mit einseitigen Spalten an der Kanalunterseite
- e-h) Zeitserie für ein Pseudo-Stoßsystem mit Spalten an der Kanalunterseite





2.5 Geometrieoptimierung

Im Rahmen des Projekts „Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion“ erfolgte nach der Basis-Auslegung des Reaktors eine stetige Weiterentwicklung der einzelnen Komponenten. Dabei stellte die Optimierung des Pseudo-Stoßsystems eine der vorrangigen Aufgaben dar. Neben grundlegenden Untersuchungen an Ersatzsystemen hinsichtlich der axialen und lateralen Stabilisierung des Pseudo-Stoßsystems wurden ebenso aktive wie passive Maßnahmen untersucht, um die Länge des Shocktrains zu reduzieren und möglichst einen singulären geraden Verdichtungsstoß mit homogenen Nachstoßzuständen zu erzeugen. Hier besteht die Herausforderung darin, die Anforderungen an den statischen Temperaturverlauf, die sich aus der Verbrennungskinetik des gewählten Präkursors ableiten, passiv durch eine geeignete Strömungsführung zu erfüllen. Einerseits muss die statische Temperatur vor dem Stoßsystem etwa $\Delta T = 100 \text{ K}$ unter der Zündtemperatur des Präkursors ($T_{TEOS} \approx 1200 \text{ K}$) liegen, um jegliche Vorreaktionen zu vermeiden. Andererseits sollte über den Stoß die Zündtemperatur überschritten werden, um eine homogene Verbrennung in Gang zu setzen. Im Reaktor ist zudem eine statische Temperatur im Bereich von $T = 1300 - 1400 \text{ K}$ nötig, um einen raschen und vollständigen Abbrand des Präkursors und somit eine hohe Partikelqualität zu gewährleisten (siehe auch Kapitel 1.3.1).

Hierzu wurden zahlreiche aktive und passive Maßnahmen sowohl numerisch als auch experimentell untersucht. Im Folgenden werden die Idee der passiven Stoßbeeinflussung über eine Konturmodifikation (Kapitel 2.5.1) sowie die zwei aktuellen Konzepte (Kapitel 2.5.2 und 2.5.3) für die erste Lavaldüse vorgestellt.

2.5.1 Absaugung und Konturausbuchtung

Eine grundlegende Idee der passiven Stoßbeeinflussung geht zurück auf die Arbeit von AL-HASAN und SCHNERR [8]. Numerische Untersuchungen zur Grenzschichtabsaugung zeigten, dass eine vollständige Absaugung der Ablöseblase hinter dem Verdichtungsstoß mit moderaten Absaug-Massenströmen nicht erzielt werden kann. Eine Absaugung der Grenzschicht stromauf des ersten Stoßes führte jedoch zu einer deutlichen Reduktion der Länge des Pseudo-Stoßsystems und einem starken Verdichtungsstoß in der Kanalmitte (siehe Abb. 2.57). AL-HASAN und SCHNERR [8] führten dies auf die Interaktion der durch die Absaugung induzierten Expansion mit dem schrägen Verdichtungsstoß zurück. Einerseits ist ein steilerer Verdichtungsstoß an der Kanalwand nötig, um der durch die Expansion hervorgerufenen Strömungsumlenkung entgegenzuwirken. Andererseits werden die Vorstoßmachzahl und somit auch der Ruhedruckverlust erhöht, wodurch (ähnlich wie bei Pseudo-Stoßsystemen mit einer Machdisk auf der Kanalachse) die Anzahl der

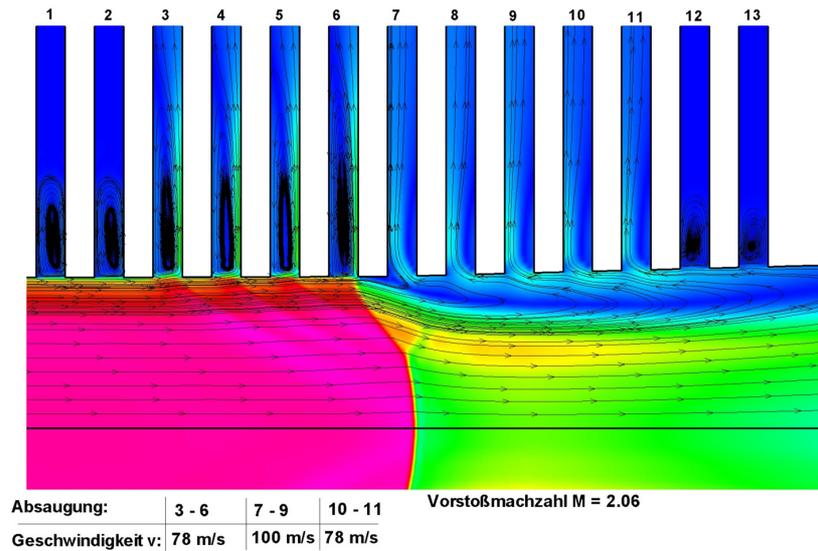


Abbildung 2.57: Aktive Stoßbeeinflussung durch Grenzschichtabsaugung nach AL-HASAN [5]

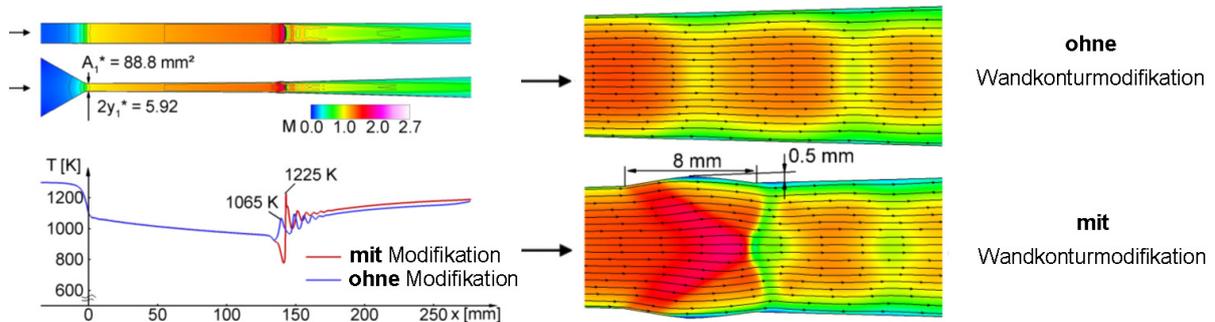


Abbildung 2.58: Passive Stoßbeeinflussung durch eine Konturausbuchtung nach AL-HASAN [5]
 Darstellt ist die Machzahlverteilung und der statische Temperaturverlauf mit und ohne Konturmodifikation.

Re-Expansionen in den Überschall reduziert wird.

Auf Basis dieser Erkenntnis wurde eine neue Düsengeometrie entworfen, in welcher die Expansion durch eine lokale Konturausbuchtung hervorgerufen wird. In Abb. 2.58 ist links der simulierte Machzahlverlauf auf der horizontalen sowie der vertikalen Symmetrieebene der ersten Düse mit Konturausbuchtung gezeigt. Der Verlauf der statischen Temperatur mit und ohne Konturausbuchtung ist dem darunterliegenden Diagramm zu entnehmen. Eine vergrößerte Abbildung des Stoßsystems ist für beide Fälle rechts dargestellt. Die konkave Ausbuchtung führt zu einer deutlich höheren Nachstoßtemperatur $\hat{T} = 1225\text{ K}$ gegenüber der Geometrie ohne Ausbuchtung mit $\hat{T} = 1065\text{ K}$. Auch stromab des Pseudo-Stoßsystems liegt eine etwas höhere statische Temperatur vor. Da diese jedoch exponentiell in die Reaktionsgeschwindigkeit eingeht, hat die Konturausbuchtung einen deutlich verbesserten Abbrand des Präkursors zur Folge.

2.5.2 Verkürzte rechteckige Düse

Die experimentellen und numerischen Untersuchungen des Teilprojekts TP4 hinsichtlich der Durchmischung des Präkursors ergaben, dass die ursprünglich abgeschätzte Mischungslänge von $\Delta x \approx 100 - 150 \text{ mm}$ auf $\Delta x \approx 75 \text{ mm}$ reduziert werden kann. Dies hat den Vorteil, dass der Einfluss der Grenzschicht auf das Pseudo-Stoßsystem reduziert und so ein kürzeres Pseudo-Stoßsystem mit homogeneren Nachstoßzuständen erzeugt

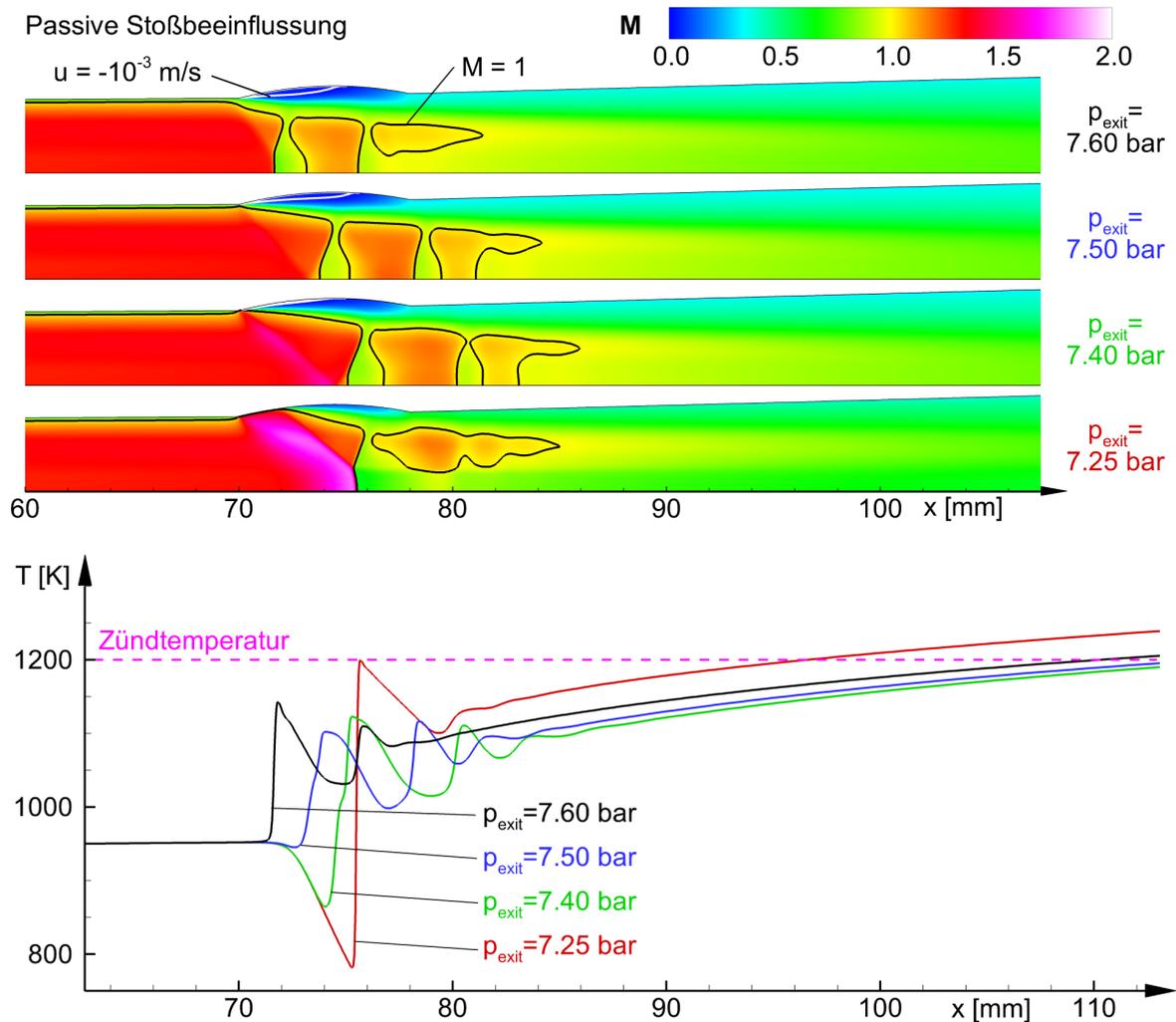


Abbildung 2.59: Passive Stoßbeeinflussung durch eine Konturausbuchtung in einer verkürzten Düse. Dargestellt ist die Machzahl auf der Symmetrieebene (oben) für unterschiedliche Gegendrücke sowie der entsprechende Verlauf der statischen Temperatur entlang der Kanalachse (unten). Als Turbulenzmodell wurde das BSL-EARSM verwendet. Die Einlassrandbedingungen sind $p_{01} = 10 \text{ bar}$ und $T_{01} = 1500 \text{ K}$, der Präkursor wird mit $u = 100 \text{ m/s}$ und einer statischen Temperatur von $T = 450 \text{ K}$ eingespeist. Die Wandtemperatur beträgt $T = 800 \text{ K}$, der jeweilige Gegendruck ist im Bild angegeben.

werden kann. Bei der numerischen Auslegung einer neuen verkürzten Düse wurde das Konzept der Konturmodifikation nach AL-HASAN und SCHNERR [8] übernommen. Abbildung 2.59 zeigt die Machzahl auf der Symmetrieebene für verschiedene Gegendrucke. Bei einem Gegendruck von $p_{exit} = 7.60 \text{ bar}$ bildet sich das Pseudo-Stoßsystem kurz vor der konkaven Ausbuchtung. Dieses ist sehr viel kürzer als in den vorangegangenen Untersuchungen, da die Vorstoßmachzahl auf $M = 1.36$ reduziert wurde.

Durch eine Absenkung des Gegendrucks auf $p_{exit} = 7.50 \text{ bar}$ verschiebt sich das Pseudo-Stoßsystem leicht stromab und erreicht erstmals die konkave Ausbuchtung. Die Schalllinie (schwarz dargestellt) krümmt sich direkt am Beginn der Ausbuchtung zur Kanalwand und induziert eine leichte Expansion. Das Pseudo-Stoßsystem wird jedoch aufgrund des veränderten Stoßwinkels länger. Erst bei $p_{exit} = 7.25 \text{ bar}$ führt die Verschneidung der Expansionen zu einer Machreflexion in der Kanalmitte. Trotz der deutlich gestiegenen Vorstoßmachzahl von $M = 1.80$ tritt auf der Achse keine Re-Expansion der Strömung in den Überschall auf. Weiterhin ist das Rezirkulationsgebiet, welches sich zuvor in der konkaven Ausbuchtung gebildet hat, vollständig verschwunden. Der Verlauf der statischen Temperatur entlang der Kanalachse (Abb. 2.59 unten) zeigt, dass durch die hohe Vorstoßmachzahl eine Nachstoßtemperatur von $\hat{T} = 1200 \text{ K}$ erreicht wird und somit die Anforderungen an die neue Düse erstmals erfüllt werden.

Stoßoszillation

Eine Besonderheit dieser Geometrie zeigt sich für die Simulation mit einem Gegendruck von $p_{exit} = 7.30 \text{ bar}$. Hier konnte auch nach langer Rechenzeit selbst unter Verwendung eines lokalen Zeitschrittverfahrens keine Konvergenz erzielt werden. Da lokale Zeitschrittverfahren in der Regel die Wellendynamik eines solchen Systems unterdrücken, ist davon auszugehen, dass bei diesem Gegendruck keine stabile Stoßposition möglich ist. Eine instationäre Simulation desselben Falls zeigt, dass das Pseudo-Stoßsystem stattdessen zwischen zwei Extrempositionen oszilliert. Eine Zeitserie des vollständigen Zyklus der auftretenden Stoßpositionen ist in Abb. 2.60 dargestellt. Ausgehend von einer Stoßposition ähnlich dem Fall mit $p_{exit} = 7.40 \text{ bar}$ expandiert die Strömung, bis sich eine maximale Vorstoßmachzahl von $M \approx 1.9$ einstellt. Nach Abb. 2.59 entspricht dies einem Gegendruck von $p_{exit} < 7.25 \text{ bar}$. Die Interaktion mit der Auslassrandbedingung führt dazu, dass das Pseudo-Stoßsystem aufgrund einer rücklaufenden Druckwelle rasch zurück in die Ausgangsposition geschoben wird. Da auch diese Position inkompatibel zur Auslassrandbedingung ist, beginnt der Zyklus erneut. Die Analyse des Druckverlaufs entlang der Achse bestätigt, dass die Frequenz von $f \approx 700 \text{ Hz}$ auf die Eigenfrequenz des Rechengebietes zurückzuführen ist.

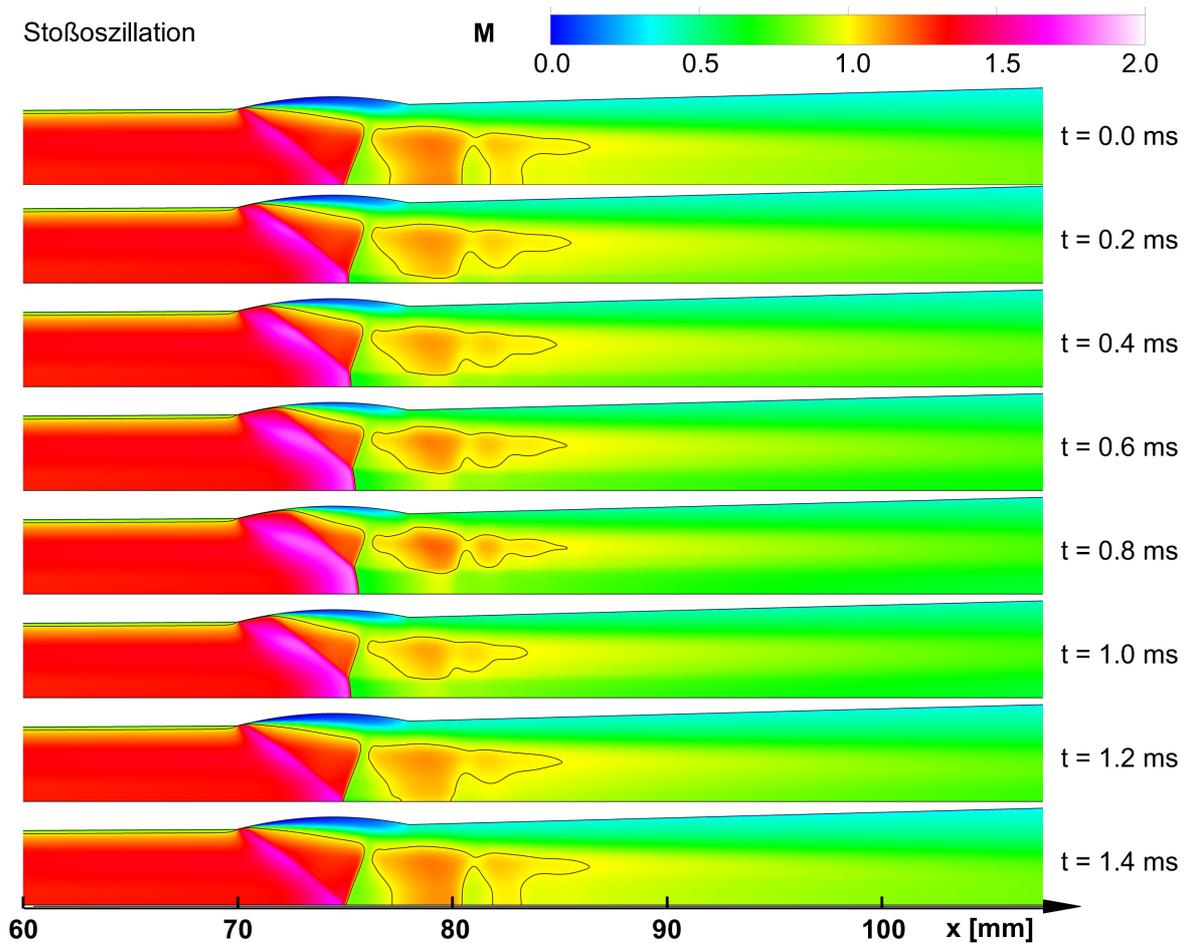


Abbildung 2.60: Zeitserie der oszillierenden Stoßposition in der verkürzten rechteckigen Düse
Dargestellt ist die Machzahl auf der Symmetrieebene. Der Gegendruck beträgt $p_{exit}=7.30 \text{ bar}$, die Einlassrandbedingungen sind in Abb. 2.59 gegeben.

Eine experimentelle Untersuchung dieser Stoßoszillation an einem Ersatzsystem konnte bisher noch nicht durchgeführt werden. Der Nachweis einer stabilen Stoßposition wäre jedoch zwingend notwendig bevor dieses Konzept im Partikelreaktor umgesetzt wird. Eine derartige Oszillation hätte einen inhomogenen Abbrand des Präkursors und somit eine stark verminderte Partikelqualität zur Folge. Zudem könnte die einhergehend gepulste Wärmezufuhr aus der Präkursorverbrennung die Oszillation des Pseudo-Stoßsystems weiter verstärken.

Hysterese

Eine weitere Besonderheit dieser Geometrie zeigt sich, wenn der Gegendruck weiter abgesenkt wird. Abbildung 2.61 zeigt den Machzahlverlauf im Pseudo-Stoßsystem für verschiedene Gegendrücke (jeweils rechts angetragen). Dabei entspricht die obere Hälfte der Symmetrieachse dem Ergebnis einer schrittweisen Absenkung des Gegendrucks aus-

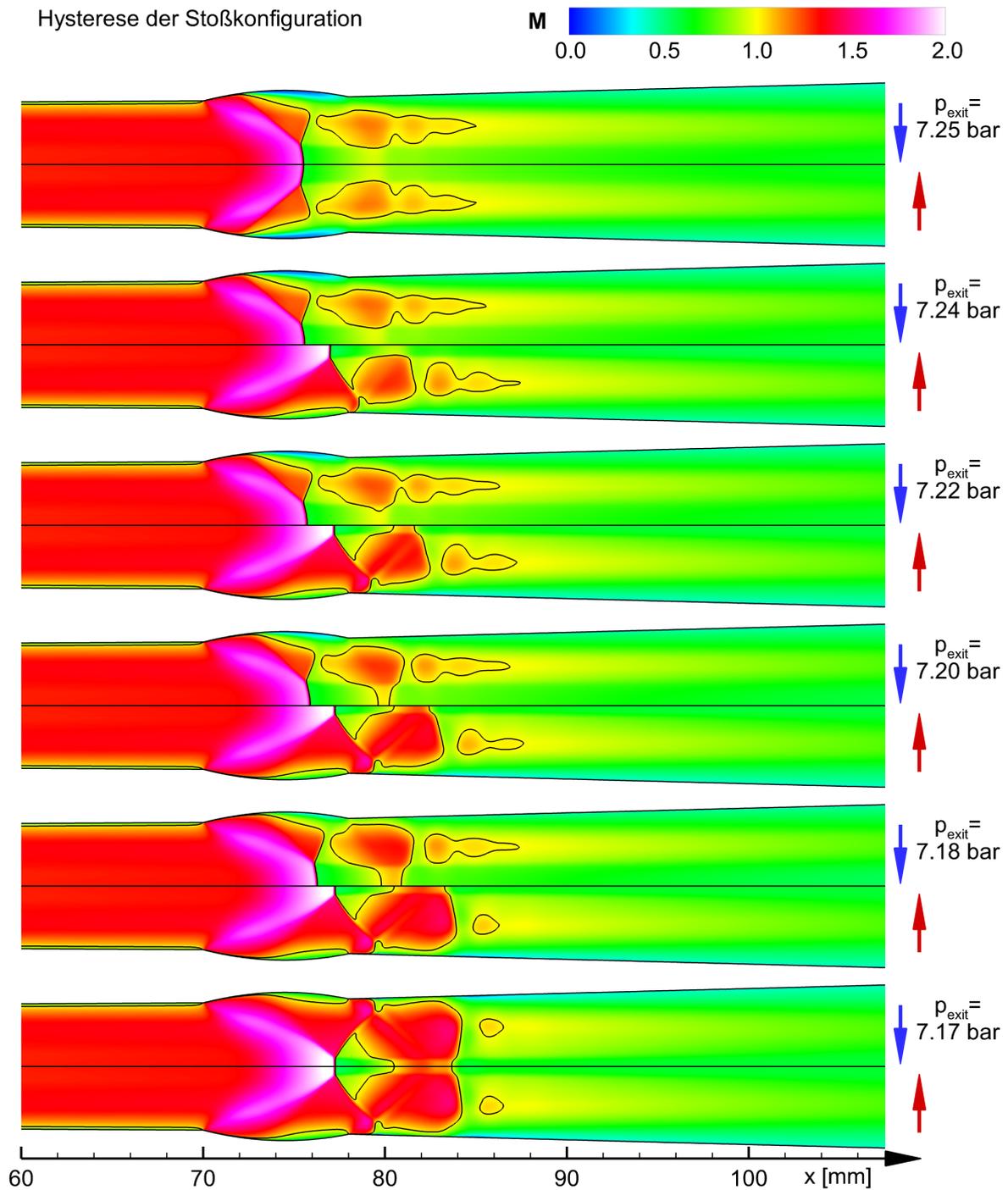


Abbildung 2.61: Hysterese der Stoßposition in der verkürzten rechteckigen Düse

Dargestellt ist die Machzahl auf der Symmetrieebene, der entsprechende Gegenruck ist rechts dargestellt. Die obere Hälfte der Achse zeigt jeweils den Machzahlverlauf bei schrittweiser Absenkung des Gegenrucks ausgehend von $p_{\text{exit}}=7.25 \text{ bar}$. Die jeweilige untere Hälfte entspricht einer schrittweisen Druckzunahme ausgehend von $p_{\text{exit}}=7.17 \text{ bar}$. Die Einlassrandbedingungen sind in Abb. 2.59 gegeben.

gehend von $p_{exit} = 7.25 \text{ bar}$. Die untere Hälfte hingegen zeigt die Ergebnisse einer schrittweisen Druckzunahme ausgehend von $p_{exit} = 7.17 \text{ bar}$. Bei der Absenkung ändert sich die Struktur des ersten Stoßes bis zu einem Gegendruck von $p_{exit} = 7.18 \text{ bar}$ nur geringfügig. Lediglich die Länge der Mischungszone nimmt leicht zu. Bei einem Gegendruck von $p_{exit} = 7.17 \text{ bar}$ schlägt das Pseudo-Stoßsystem um und wird durch den zweiten engsten Querschnitt, der sich aufgrund der divergent-konvergenten Konturausbuchtung einstellt, hindurchgezogen. Dort expandiert die Strömung nochmals deutlich in den Überschall. Der reflektierte Stoß, kommend von der Machreflexion des ersten Stoßes, trifft erst nach der Ausbuchtung an die Kanalwand und bildet dort ebenso eine kleine Machreflexion. Wird der Druck nun schrittweise erhöht, so verhindert diese Machreflexion an der Kanalwand eine Stromaufwirkung des gestiegenen Gegendrucks. Folglich bleibt das Überschallgebiet nach der Konturausbuchtung erhalten, bis die Machreflexion bei einem Gegendruck von $p_{exit} = 7.25 \text{ bar}$ zusammenbricht und sich das Pseudo-Stoßsystem an der ursprünglichen Stelle ausbildet.

Dieses Hystereseverhalten ist in RANS-Simulationen stabil, da keine turbulenten Fluktuationen wiedergegeben werden. Im Experiment hingegen ist es denkbar, dass die Strömung unkontrolliert zwischen zwei möglichen Lösungen wechselt. Dies wäre, ebenso wie die vorher beschriebene Stoßoszillation, hinsichtlich einer geringen Bandbreite der Partikelgrößenverteilung von Nachteil. Die experimentelle Untersuchung des Düsenkonzepts ist daher zwingend notwendig, bevor es an der Pilotanlage zur gasdynamisch induzierten Partikelerzeugung eingesetzt wird. Weiterhin basiert dieses Konzept auf der Vorgabe, dass die Düse in den bestehenden Reaktor eingebaut werden kann. Im Falle einer Neuauslegung der Gesamtanlage ist eine Überarbeitung bzw. numerische Weiterentwicklung des Konzepts empfehlenswert. Neben der gezielten Vermeidung von Stoßoszillation und Hysterese wäre vor allem eine raschere Verzögerung der Strömung nach dem Pseudo-Stoßsystem sinnvoll.

2.5.3 Verkürzte rotationssymmetrische Düse

Ein alternatives Konzept zu der bestehenden rechteckigen Düse wäre eine rotationssymmetrische Umsetzung. Der Vorteil einer solchen Düse ist, dass der hydraulische Durchmesser stark verringert und dadurch Reibungsverluste reduziert werden. Weiterhin reduziert sich das Verhältnis der Grenzschichtdicke δ zum Kanaldurchmesser D und somit die Länge des zu erwartenden Pseudo-Stoßsystems (siehe auch Abb. 2.3). Im Gegensatz zu einer rechteckigen Düse treten weder Sekundärströmungen noch Eckenablösungen auf. Erste numerische Untersuchungen belegen, dass diese Vorteile die Bildung eines Pseudo-Stoßsystems nahezu vollständig unterbinden. In Abb. 2.62 ist oben der Machzahlverlauf

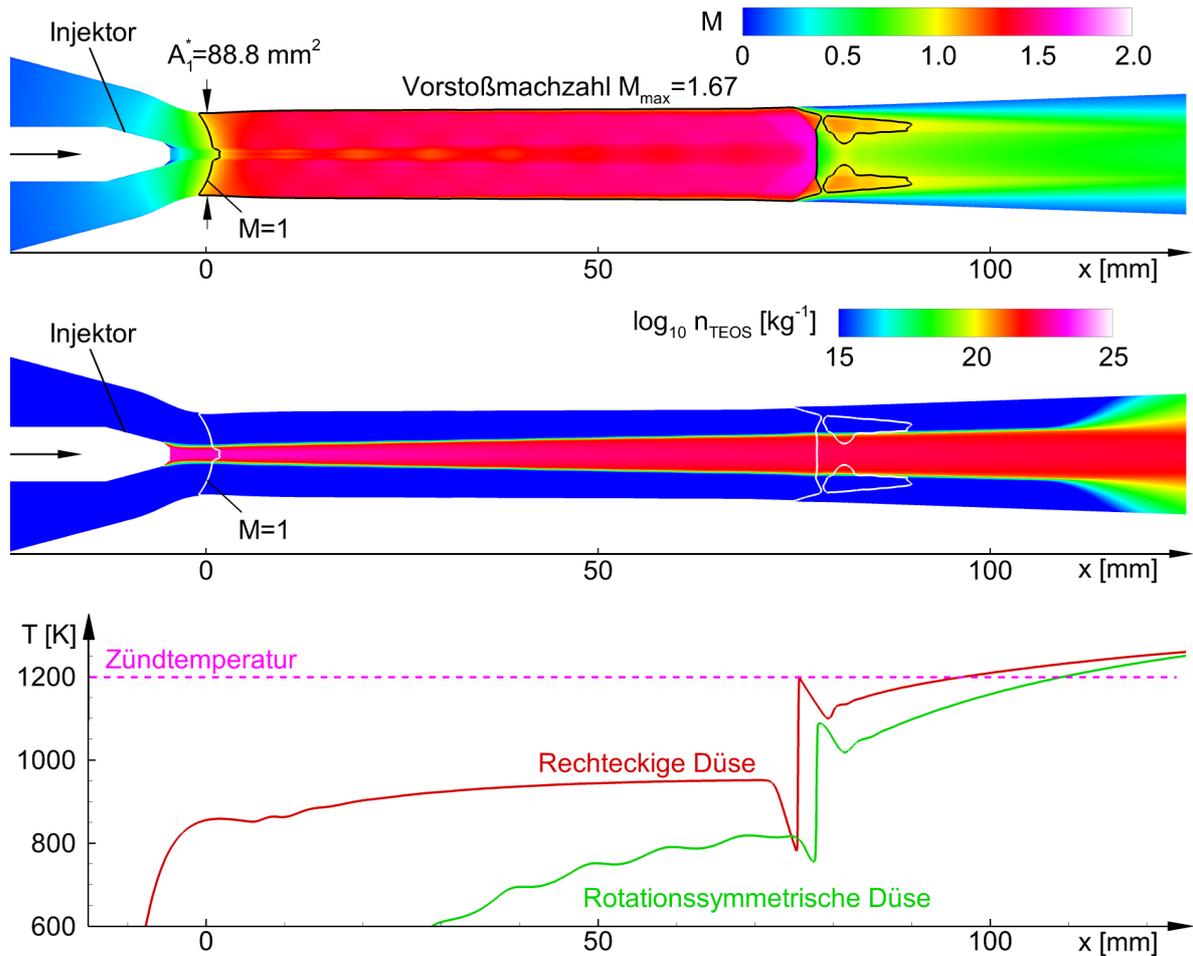


Abbildung 2.62: Verkürzte rotationssymmetrische Düse mit angepasster Konturführung
 Dargestellt ist die Machzahl auf der Symmetrieebene (oben), die Präkursorkonzentration (mittig) sowie eine Gegenüberstellung des statischen Temperaturverlaufs der rotationssymmetrischen und der rechteckigen Düse (unten). Die Einlassrandbedingungen sind in Abb. 2.59 gegeben. Der Gegendruck beträgt $p_{exit} = 7.45 \text{ bar}$.

einer solchen Düse dargestellt. Die Einlassrandbedingungen entsprechen den Untersuchungen in Kapitel 2.5.2. Der engste Querschnitt der Düse ist flächengleich zu der rechteckigen Düse ausgelegt. Die Konturführung am engsten Querschnitt wurde dahin gehend geändert, dass bereits kurz nach dem engsten Querschnitt mit Machzahl $M \approx 1.4$ eine deutliche Überschallströmung vorliegt, um eine noch geringere statische Temperatur zu erreichen. Weiterhin werden dadurch die Einflüsse von Fertigungsungenauigkeiten und der Wandrauigkeit reduziert. Um die Machzahl im Überschallteil konstant bei $M \approx 1.4$ zu halten, ist kurz nach dem engsten Querschnitt eine rasche Reduktion des Öffnungswinkels nötig. Dadurch werden Kompressionswellen hervorgerufen, die sich im

Machzahlverlauf bemerkbar machen und bis zum Stoß erhalten bleiben.

Kurz vor dem Stoß wurde auch in dieser Konfiguration eine Konturmodifikation vorgesehen. Im Gegensatz zu der konvergent-divergenten Ausbuchtung nach AL-HASAN und SCHNERR [8] wurde hier nur eine lokale Änderung des Öffnungswinkels gewählt. Dadurch wird die axiale Stoßposition fixiert und eine mögliche Hysterese des Pseudo-Stoßsystems unterbunden. Eine Variation des Gegendrucks zwischen $p_{exit} = 7.30 \text{ bar}$ und $p_{exit} = 7.80 \text{ bar}$ bestätigt, dass Form und Länge des Pseudo-Stoßsystems nahezu unbeeinflusst bleiben. Der positive Effekt der Expansion auf die Stoßstruktur kommt jedoch auch hier zur Geltung.

Der Nachteil dieser Konfiguration ist indessen eine erheblich schlechtere Durchmischung des Präkursors. Dieser tritt in der Simulation am Injektor mit einer Geschwindigkeit von $u = 100 \text{ m/s}$ und einer statischen Temperatur von $T = 450 \text{ K}$ ein. Die vorgegebene Präkursorkonzentration beträgt $n_{TEOS} = 10^{23} \text{ kg}^{-1}$. Wie man der Abb. 2.62 (mittig) entnehmen kann, erfolgt bis nach dem Stoßsystem nahezu keine Durchmischung. Dies hat einerseits den Vorteil, dass der gesamte Präkursorstrom den Temperatursprung über einen einzelnen senkrechten Verdichtungsstoß erfährt. Andererseits ist die statische Temperatur aufgrund der mangelhaften Durchmischung zu gering, um instantan die Zündtemperatur zu erreichen. Ein Vergleich des statischen Temperaturverlaufs beider Konzepte (rechteckig und rund) ist in Abb. 2.62 (unten) dargestellt.

Um eine rotationssymmetrische erste Düse umzusetzen, muss folglich bereits im Überschall eine bessere Durchmischung erzielt werden. Dies könnte beispielsweise durch eine modifizierte Injektorgeometrie erreicht werden. Weiterhin könnte die inhomogene Abströmung nach dem Stoßsystem durch eine Änderung der Querschnittsfläche von rund auf rechteckig erzielt werden. Die dadurch hervorgerufenen Wirbelpaare würden die schnelle Kernströmung mit der langsameren Randströmung durchmischen und somit im Reaktor zu einem optimierten Geschwindigkeitsprofil führen.

Da auch ein einseitiges Anlegen des Pseudo-Stoßsystems nicht ausgeschlossen werden kann, muss vor einer Umsetzung in der Pilotanlage das Symmetrieverhalten numerisch und gegebenenfalls auch experimentell untersucht werden. Eine Drallströmung könnte möglicherweise zur Stabilisierung des Shocktrains auf der Kanalachse beitragen.

PARTIKELMODELLIERUNG

3.1 Übersicht

Die In-Situ-Analyse von Wachstumsprozessen nanoskaliger Partikel stellt bis heute eine große Herausforderung dar. Vor allem im Anfangsstadium ist eine optische Analyse der ablaufenden Prozesse nahezu unmöglich, da die Wellenlänge des sichtbaren Lichts die vorliegende Partikelgröße bereits um zwei bis drei Größenordnungen übertrifft. Das heutige Verständnis der Partikelentstehung und des anschließenden Wachstums basiert rein auf der Grundlage physikalischer Modellannahmen, deren Überprüfung anhand experimenteller Daten nur indirekt durch abgeschlossener Wachstumsvorgänge oder prozessbegleitender Phänomene, wie beispielsweise der Wärmefreisetzung, möglich ist. In Kapitel 3.1.1 soll ein kurzer Überblick und eine Begriffsdefinition der im GiP-Reaktor ablaufenden Teilprozesse der Partikelentstehung gegeben werden. Verschiedene Ansätze zur Modellierung der einzelnen Prozesse werden in Kapitel 3.1.2 zusammengefasst.

3.1.1 Partikelentstehung in der Gasphase

Die Herstellung nanoskaliger Partikel in der Gasphase geschieht ausschließlich über Kondensationsprozesse in einer stark übersättigten Dampfphase. Dieser Zustand kann zum Beispiel durch rasches Abkühlen erzeugt werden, wie es bei Inertgaskondensationsverfahren üblich ist (siehe Kapitel 1.2). In den meisten Fällen wird jedoch ein Präkursor verwendet, der über eine chemische Reaktion zersetzt wird und als Reaktionsprodukt die gewünschte Dampfphase bereitstellt. Der hier eingesetzte Präkursor Tetraethylorthosilicat (kurz TEOS, siehe Abb. 3.1) besteht aus einem Siliziummolekül (grau), vier Sauerstoffmolekülen (rot) und vier Ethylgruppen (Kohlenstoff = schwarz, Wasserstoff = weiß). Der exotherme Zerfallsmechanismus lautet:



Dabei ist anzumerken, dass die Bildung des SiO_2 schneller abgeschlossen ist als die Wärmefreisetzung. Eine detailliertere Beschreibung der Präkursorkinetik erfolgt in Kapitel 3.2.

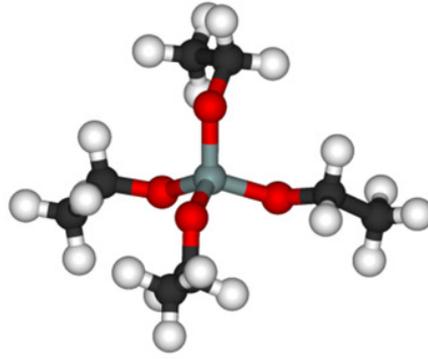


Abbildung 3.1: Struktur des Präkursors TEOS [1]

Das nach dem Abbrand molekular vorliegende SiO_2 ist bei den angestrebten Reaktorbedingungen hochgradig übersättigt, sodass instantan eine homogene Keimbildung (oder auch Nukleation, siehe Abb. 3.2) einsetzt. Aus der durch den Wechsel in eine stabile Phase frei werdenden Energie und der nötigen Energie zur Schaffung einer gekrümmten Oberfläche lässt sich in Abhängigkeit der Übersättigung eine kritische Keimgröße berechnen. Sobald diese Größe infolge thermischer Fluktuationen erreicht ist, liegt ein stabiler, wachstumsfähiger Keim (oder auch Cluster) vor. Nimmt die Übersättigung hingegen drastisch ab, so ist auch der umgekehrte Prozess möglich und es kommt zur Fragmentation des Keims. Der Prozess der Monomer- und Keimbildung wird in Kapitel 3.3.1 detailliert dargestellt.

Die zufällige Kollision zweier Cluster wird als Koagulation bezeichnet. Diese verschmelzen dabei zu größeren Partikeln. Die Kollisions- oder Koagulationsrate ergibt sich aus der Temperatur, der Cluster- oder Partikelgröße und der Knudsenzahl (siehe Kapitel 3.3.2). Das vollständige Verschmelzen zu einem runden Partikel wird als Koaleszenz bezeichnet. Dieser Prozess erfolgt primär in Abhängigkeit von der Partikeltemperatur, der Viskosität des Partikels sowie des Durchmessers der Ausgangspartikel. Der Vollständigkeit halber wird in Kapitel 3.3.3 ein kurzer Überblick über die treibenden Mechanismen wiedergegeben.

Die Morphologie der entstehenden Partikel kann aus dem Verhältnis der charakteristischen Koagulationszeit τ_{Koag} und der charakteristischen Koaleszenzzeit τ_{Koal} abgeleitet werden. Benötigt ein Partikel durchschnittlich länger, um auf einen anderen Partikel zu treffen, als mit diesem zu verschmelzen ($\tau_{Koag}/\tau_{Koal} \gg 1$), so bilden sich überwiegend sphärische Partikel. Bei $\tau_{Koag}/\tau_{Koal} \approx 1$ kommt es zu nichtsphärischen, versinterten Partikeln. Ist der Fließprozess hingegen sehr viel langsamer, $\tau_{Koag}/\tau_{Koal} \ll 1$, so bilden sich fraktale Strukturen. Diese können selbst bei niedrigen Temperaturen noch feste Sinterbrücken ausbilden. Man bezeichnet die Partikel dann als Aggregate oder „hard agglomerates“. Wird die Sintertemperatur jedoch vor der Kollision vollständig unterschritten,

so werden die Partikel nur durch die Van-der-Waals Kräfte zusammengehalten und als Agglomerate oder „soft agglomerates“ bezeichnet. Abbildung 3.3 zeigt drei TEM-Bilder (Transmissionselektronenmikroskopie) der im GiP-Reaktor produzierten Partikel mit jeweils unterschiedlicher Morphologie.

Neben der Koagulation gibt es weitere, untergeordnete Wachstumsprozesse, die allgemein als Oberflächenwachstum bezeichnet werden. Dazu zählt sowohl die Anlagerung von SiO_2 -Molekülen an bestehenden Partikeln (auch als heterogene Kondensation bezeichnet) als auch die Anlagerung eines nicht- oder nicht vollständig verbrannten Präkursors.

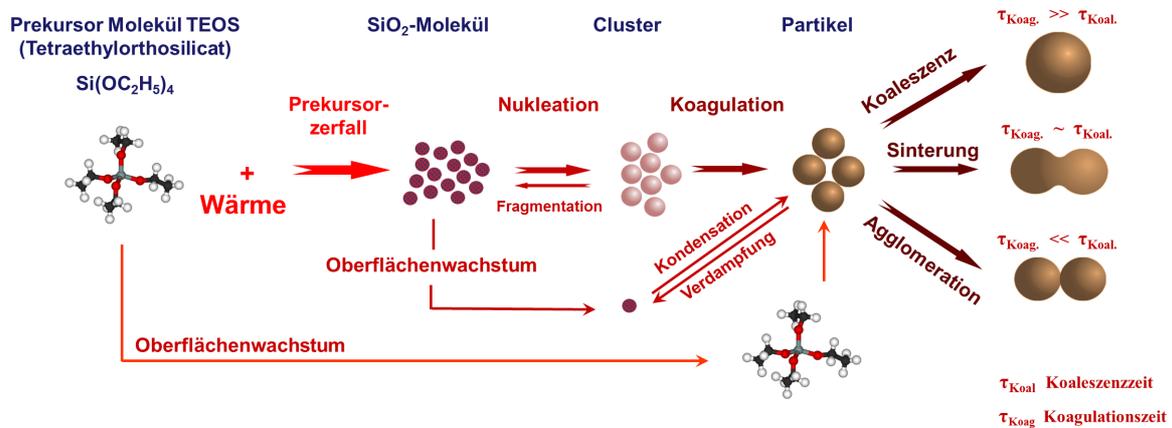


Abbildung 3.2: Prozess der Partikelbildung [2]

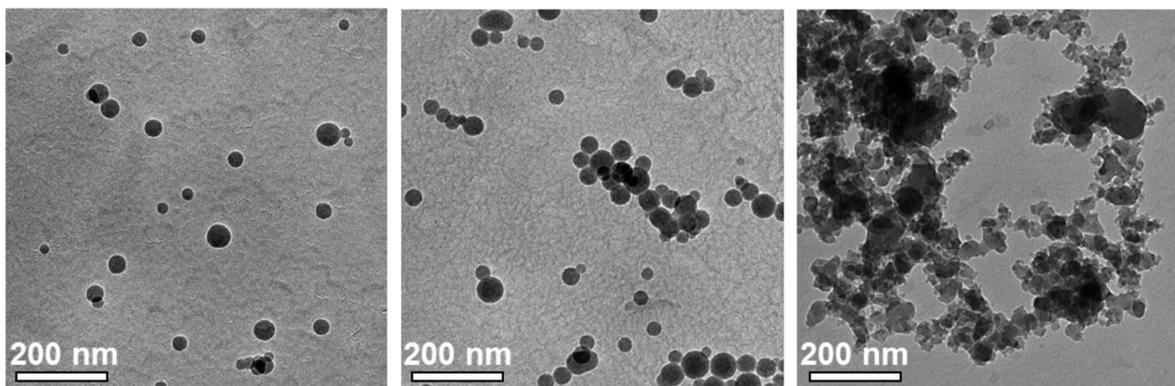


Abbildung 3.3: Prozessbedingte Morphologie der im GiP-Reaktor erzeugten Partikel (TEM-Bilder)
links: sphärische, nicht agglomerierte Partikel
mittig: sphärische, agglomerierte Partikel oder „soft agglomerates“
rechts: aggregierte Partikel („hard agglomerates“) mit fraktaler Struktur

3.1.2 Literatur

Die klassische Keimbildungstheorie basiert auf den Arbeiten von VOLMER und WEBER [140], BECKER und DÖRING [12], FRENKEL [35] und ZELDOVICH [154]. Sie beschreibt allgemein den Phasenwechsel aus einem metastabilen, übersättigten Zustand durch Nukleation (z. B. für Kavitation, Kondensation, Kristallisation). Dabei wird unter Annahme der Kontinuumsthermodynamik die frei werdende Energie durch den Phasenwechsel und die nötige Energie zur Schaffung einer Phasengrenzfläche (sog. Nukleationsbarriere) bilanziert. Diese Annahme ist für Keime, welche in der Größenordnung einiger Moleküle liegen, sicherlich nicht gerechtfertigt, da sich Eigenschaften wie beispielsweise die Oberflächenspannung stark von den Eigenschaften des Bulk-Materials unterscheiden (siehe z. B. [139]). Daher wurden zahlreiche Modifikationen entwickelt [15, 27, 100, 113, 114], wobei jedoch keine dieser Theorien in der Lage ist, Nukleation allgemein und über einen großen Temperatur- und Sättigungsbereich wiederzugeben [78]. In dieser Arbeit wird die Nukleationsrate nach FRIEDLANDER [38] bestimmt, da dieses Modell häufig zur Beschreibung der Aerosolbildung verwendet wird und diesbezüglich experimentelle Daten gut wiedergibt.

Das Partikelwachstum wurde erstmals von SMOLUCHOWSKI [127] beschrieben. Ausgehend von einem monodispersen Ausgangsaerosol beschreibt er die zeitliche Änderung der Partikelanzahl durch Koagulation. Die Erhaltungsgleichung wurde um verschiedene weitere physikalische Eigenschaften und Prozesse wie Nukleation, Verdampfung und Oberflächenwachstum erweitert und wird heute als General Dynamic Equation (GDE) bezeichnet (siehe Gleichung 3.29). Seither wurden verschiedene Ansätze verfolgt, um eine Lösung für die nichtlineare partielle Integrodifferentialgleichung zu entwickeln.

Die verschiedenen Modelle zur Lösung der GDE lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- **Diskrete Modelle** lösen je eine Erhaltungsgleichung für n Partikelgrößen bestehend aus n Molekülen. Daher bieten diese Modelle einerseits den höchsten Grad an Information über die Partikelgrößenverteilung, sind jedoch andererseits aufgrund des entsprechend hohen Rechenaufwands nur begrenzt sinnvoll einsetzbar.
- **Sektionale Modelle** reduzieren den Satz an Erhaltungsgleichungen, indem die Partikel zu Sektionen konstanter Größe (oder Volumen) zusammengefasst werden.
- **Polydisperse Modelle** nutzen die Momentenmethode, um den Rechenaufwand stark zu reduzieren. In der Regel reicht der Transport von drei bis vier Momenten, um eine Aussage über den mittleren Partikeldurchmesser und dessen Standardabweichung zu ermöglichen. Die Berechnung eines bimodalverteilten Partikeldurchmessers ist aber nicht ohne Weiteres möglich.

- **Monodisperse Modelle** berechnen nur den mittleren Partikeldurchmesser und bieten daher den geringsten Informationsgrad. Die Modelle zeigen jedoch im Vergleich zu den polydispersen Modellen ein besseres Konvergenzverhalten.

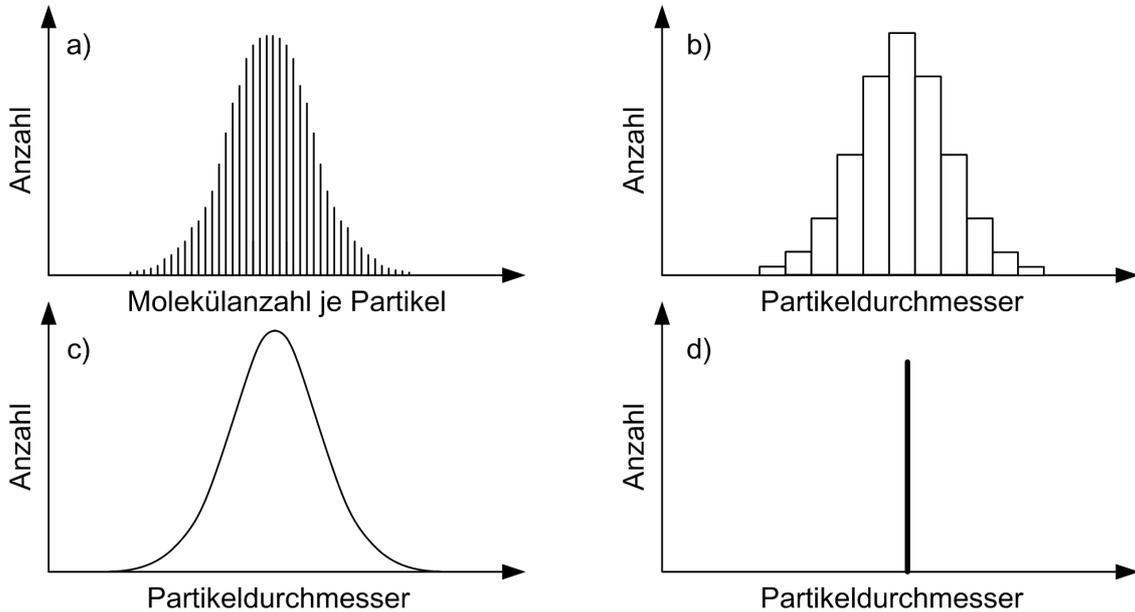


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung verschiedener Modelle zur Lösung der GDE

- Diskretes Modell
- Sektionales Modell
- Polydisperses Modell
- Monodisperses Modell

Das Modell von SMOLUCHOWSKI [127] basiert unter anderem auf der Annahme, dass die Partikel instantan zu einem neuen runden Partikel verschmelzen. Da die Querschnittsfläche der Partikel in die Koagulationsrate eingeht (siehe Gl. 3.33 und 3.34), wird die Koagulationsrate für versinterte Partikel unterschätzt. KOCH und FRIEDLANDER [75, 76] führten ein lineares Ratenmodell zur Reduktion der Partikeloberfläche ein und untersuchten erstmals den zeitlichen Verlauf des Sinterstadiums in Abhängigkeit einer Sinterrate nach FRENKEL [36]. Auf Basis dieser Arbeit entwickelten KRUIS *et al.* [80] ein monodisperses Modell, welches die Oberfläche der Partikel bilanziert und somit eine grobe Aussage über die Morphologie der Partikel ermöglicht. Es wurde jedoch über verschiedene Präkursoren berichtet, dass mit dem linearen Ratenmodell die Größe der Primärpartikel bzw. die Sinterrate unterschätzt wird [33, 150]. Dies wurde auch von ZACHARIAH und CARRIER [153] durch Molekulardynamik-Simulationen bestätigt. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass sich die Partikel aufgrund der frei werdenden Oberflächenenergie signifikant aufheizen und somit der Koaleszenzvorgang beschleunigt wird. JEONG und CHOI [65] stellen basierend auf der Arbeit von KRUIS *et al.* [80] ein bimodal-

monodisperses Modell mit variablen Stützstellen vor. PANDA und PRATSINIS [101] und TSANTILIS *et al.* [136] entwickeln ein monodisperses Modell, welches Koaleszenzvorgänge vernachlässigt und stattdessen neben Koagulation auch Nukleation berücksichtigt.

Polydisperse Modelle wurden beispielsweise von FRENKLACH und HARRIS [37] (ohne Annahme über die Form der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion), PARK *et al.* [105] (2-D Berechnung), JEONG und CHOI [66] (bimodal-polydisperses Modell) und SCHWADE und ROTH [123] (inklusive Sintervorgänge) vorgestellt.

Sektionale Modelle mit festen Größenklassen finden sich unter anderem bei KUMAR und RAMKRISHNA [83], WU und FLAGAN [149] und HOUNSLOW *et al.* [62]. PARK und ROGAK [106] berücksichtigen in ihrem Modell zusätzlich Oberflächenwachstum. Sektionale Modelle mit variablen Größenklassen wurden von KUMAR und RAMKRISHNA [84] und KIM und SEINFELD [71] für Ein- und Mehrkomponentenaerosole entwickelt.

Die Berücksichtigung des Koaleszenzprozesses führt bei sektionalen Modellen zu einem extrem hohen Rechenaufwand, da neben der Unterteilung in n verschiedene Größenklassen für jede Größenklasse auch noch m unterschiedliche Agglomerationsgrade berücksichtigt werden, woraus sich $n \cdot m$ Erhaltungsgleichungen ergeben. Dies wurde erstmals von XIONG und PRATSINIS [152] durchgeführt. JEONG und CHOI [64] können den Rechenaufwand signifikant reduzieren, indem sie den Aggregationszustand jeder Sektion nach KRUIS *et al.* [80] berechnen. Weitere Varianten zur Reduktion des Rechenaufwands wurden von TSANTILIS und PRATSINIS [137] und TSANTILIS *et al.* [135] vorgestellt.

Wichtige Voraussetzung für die Berechnung des Partikelwachstums ist eine genaue Kenntnis über die vorliegenden Strömungszustände und Verweilzeiten. JOHANNESSEN *et al.* [67] extrahieren diese aus CFD-Simulationen und berechnen das Partikelwachstum entlang verschiedener Trajektorien. Jegliche Information über die Durchmischung geht dabei jedoch verloren. SCHILD *et al.* [121] umgehen dieses Problem, indem sie erstmals ein monodisperses Modell in den CFD-Code Fluent implementieren. SCHWADE und ROTH [123] bzw. GIESEN [43] berechnen die Partikelsynthese in einem Heißwand- und einem Mikrowellenreaktor unter Verwendung eines polydispersen Modells. SKILLAS *et al.* [126] verwenden ein monodisperses Modell zur Berechnung des Agglomerationsgrades in einem Carbon-Black-Reaktor. Ein Vergleich verschiedener Modelle wurde von KOWALIK [78] vorgestellt. Erste hoch aufgelöste 3-D Simulationen mit einem bimodal-monodispersen Modell wurden von AL-HASAN und SCHNERR [9] veröffentlicht. Dem folgten instationäre 3-D Simulationen (AL-HASAN *et al.* [6]). GIGLMAIER *et al.* [44] und QUAATZ *et al.* [110] führten eine Parametervariation mit verschiedenen Modellen durch und konnten eine sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten erzielen.

3.2 Modellierung der Präkursorkinetik

Der Präkursor wird, wie bereits in Kapitel 1.3.1 beschrieben, kurz vor dem engsten Querschnitt über einen Injektor in die Strömung eingebracht. Der Massenstrom beträgt im Auslegungszustand 1% des Gesamtmassenstroms ($\dot{m}_{Prek} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$). Eine Modellierung als Mehrkomponentengemisch ist daher nicht nötig. Um den Rechenaufwand erheblich zu reduzieren, wird stattdessen die gesamte Präkursorkinetik wie folgt mittels des Transports passiver Skalare modelliert.

3.2.1 Transport passiver Skalare in CFX

Die Erhaltung eines passiven Skalars wird in kompressiblen Strömungen mit der Transportgleichung 3.2 beschrieben [10]. Diese setzt sich aus der Zeitableitung, dem konvektiven Transport, einer molekularen und einer turbulenten Diffusion sowie einem Quellterm zusammen. Letzterer kann direkt in CFX oder über eine Fortran-Schnittstelle durch sogenannte User-Routinen vorgegeben werden. Der Term für die turbulente Diffusion basiert auf der Reynolds- und Favre-Mittelung und muss modelliert werden. Dies geschieht üblicherweise, wie hier dargestellt, über die turbulente Viskosität μ_t und die turbulente Schmidtzahl Sc_t ($Sc_t = 0.9$). Die molekulare Diffusion wird in den hier vorgestellten Rechnungen vernachlässigt, da die exakte Berechnung des Diffusionskoeffizienten sehr aufwendig ist. Zudem ist der Term etwa zwei bis drei Größenordnungen kleiner als die turbulente Diffusion und somit von kleinerer Größenordnung als der Modellierungsfehler. Der erhöhte Rechenaufwand ist daher nicht gerechtfertigt.

$$\underbrace{\frac{\partial(\rho \cdot \varphi)}{\partial t}}_{\text{Zeitliche Änderung}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j}(U_j \cdot \rho \cdot \varphi)}_{\text{konvektiver Transport}} = \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\rho \cdot D_\Phi + \frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \frac{\partial \varphi}{\partial x_j} \right]}_{\text{Molekulare und turbulente Diffusion}} + \underbrace{Q_\varphi}_{\text{Quellterm}} \quad (3.2)$$

mit

ρ	$[kg \cdot m^{-3}]$	Dichte
φ	$[kg^{-1}]$	Erhaltungsgröße
t	$[s]$	Zeit
U	$[m \cdot s^{-1}]$	Geschwindigkeit
D_Φ	$[m^2 \cdot s^{-1}]$	Kinematische Diffusivität des Skalars
μ_t	$[Pa \cdot s]$	Turbulente Viskosität
Sc_t	$[-]$	Turbulente Schmidtzahl
Q_φ	$[m^{-3} \cdot s^{-1}]$	Volumetrischer Quellterm

Die hier auftretenden Quellterme sind hochgradig nichtlinear und die Erhaltungsgleichungen daher extrem steif. Um die Rechnung zu stabilisieren, ohne dabei den numerischen Zeitschritt drastisch zu reduzieren, kann bei Ansys CFX ein sogenannter Source Coefficient angegeben werden. Dabei handelt es sich um die Ableitung des Quellterms nach der Transportgröße (Gleichung 3.3):

$$SC = \frac{\partial Q_\varphi}{\partial \varphi} . \quad (3.3)$$

Ansys CFX bietet keine genauere Erläuterung wie dieser Term in die Berechnung eingeht. Beispielsweise kann dies bei impliziten Solvern Zeitschrittverfahren mittels folgender Fixpunktiteration durchgeführt werden:

$$\begin{aligned} \frac{\varphi_{t+1} - \varphi_t}{\Delta t} + \frac{\varphi_{i+1} - \varphi_i}{\Delta \tau} &= Q(\varphi_{i+1}) \\ &= Q(\varphi_i) + \Delta \tau \cdot \left. \frac{\partial Q_\varphi}{\partial t} \right|_i + \mathcal{O}(\Delta \tau^2) \\ &\doteq Q(\varphi_i) + \Delta \tau \cdot \underbrace{\left. \frac{\partial Q_\varphi}{\partial \varphi} \right|_i}_{SC_i} \cdot \overbrace{\frac{\varphi_{i+1} - \varphi_i}{\Delta \tau}}^{\frac{dQ}{dt}} . \end{aligned} \quad (3.4)$$

mit

φ_t Wert zum aktuellen Zeitschritt

φ_i Wert zum aktuellen Iterationsschritt

$\Delta \tau$ interner numerischer Zeitschritt

Der Zeitschritt ist konvergiert, wenn ein Abbruchkriterium ε erreicht wird:

$$\|\varphi_{i+1} - \varphi_i\| < \varepsilon \quad (3.5)$$

Daraus folgt:

$$\begin{aligned} \Rightarrow \varphi_{i+1} - \varphi_i &\approx 0 \\ \Rightarrow \varphi_{i+1} &\approx \varphi_{t+1} \\ \Rightarrow \frac{\varphi_{t+1} - \varphi_t}{\Delta t} &= Q(\varphi_{t+1}) \end{aligned} \quad (3.6)$$

3.2.2 Modellierung des Zündverzugs

Die temperaturabhängige Zündverzugszeit für den Präkursor TEOS wurde am IVG Duisburg untersucht. Stoßrohrexperimente ergaben, dass die Zündverzugszeit stark von der Zusammensetzung des Trägergases abhängig ist. Abbildung 3.5 zeigt die experimentellen Ergebnisse sowohl für trockene als auch für feuchte Luft wie sie in der Anlage stromab des Methanbrenners vorliegt. Dies ist insbesondere für die Auslegung der Machzahl im Überschallteil der ersten Düse und zur Bestimmung der Stoßposition von Interesse. Die erhöhte Zündverzugszeit unter der Anwesenheit von Wasserdampf unterbindet Vorreaktionen und erlaubt eine längere Einmischstrecke.

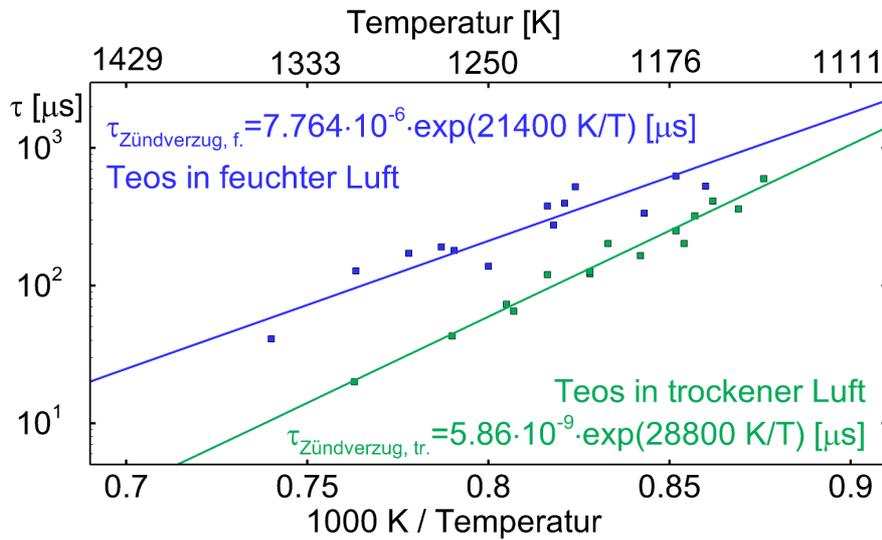


Abbildung 3.5: Zündverzugszeit des Präkursors TEOS [1]

ABDALI *et al.* [1] geben folgende Gleichungen für die Zündverzugszeit an:

$$\tau_{\text{Zündverzug, trocken}} = 5.86 \cdot 10^{-15} \cdot \exp\left(\frac{28800 \text{ K}}{T}\right) [\text{s}] , \quad (3.7)$$

$$\tau_{\text{Zündverzug, feucht}} = 7.764 \cdot 10^{-12} \cdot \exp\left(\frac{21400 \text{ K}}{T}\right) [\text{s}] . \quad (3.8)$$

Um der variierenden statischen Temperatur in der Anlage Rechnung zu tragen, wird die dimensionslose Zündverzugszeit Θ als Transportgröße definiert und am Injektoreinlass wird der Wert $\Theta = 0$ vorgegeben. Die Transportgleichung lautet:

$$\frac{\partial(\rho \cdot \Theta)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (U_j \cdot \rho \cdot \Theta) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \frac{\partial \Theta}{\partial x_j} \right] + Q_\Theta . \quad (3.9)$$

Mit dem Quellterm

$$Q_{\Theta} = \frac{1}{\tau_{\text{Zündverzug}}} \cdot \rho \quad [kg \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}] \quad (3.10)$$

folgt

$$\frac{D\Theta}{Dt} = \frac{1}{\tau_{\text{Zündverzug}}} \quad (3.11)$$

Erreicht die Transportgröße den Wert $\Theta = 1$, so ist die Zündverzugszeit abgelaufen und die Reaktion beginnt [5].

$$\Theta = \int_{t=0}^{t=t_{\text{Zündung}}} \frac{1}{\tau_{\text{Zündverzug}}} dt = 1 \quad (3.12)$$

3.2.3 Präkursorzerfall und Wärmefreisetzung

Der Zerfallsmechanismus des Präkursors TEOS wurde erstmals ausführlich von HERZLER *et al.* [58] für den im Reaktor vorgesehenen Temperaturbereich von $T \approx 1200$ K dokumentiert. Die Berücksichtigung der einzelnen Reaktionsschritte, wie sie in Abb. 3.6 dargestellt sind, ist aufgrund des hohen Rechenaufwands in den vorgesehenen CFD-Rechnungen nicht möglich.

Da für die Berechnung des Partikelwachstums in erster Linie nur die Bildungsrate für die SiO_2 -Monomere und die Wärmefreisetzung durch den Abbrand notwendig sind, wird die Gesamtreaktion auf zwei Arrheniusgleichungen reduziert. Nach HERZLER *et al.* [58] kann die Zerfallsrate von TEOS zu SiO_2 mit Gleichung 3.13 beschrieben werden:

$$k_{SiO_2} = 6.7 \cdot 10^{16} \cdot \exp\left(\frac{-38970 \text{ K}}{T}\right) \quad [s^{-1}] \quad (3.13)$$

Chemkin-Untersuchungen am IVG-Duisburg ergaben, dass die Wärmefreisetzung bei den gewählten Betriebsbedingungen etwas langsamer stattfindet. Sie geben eine Wärmefreisetzungsrates nach Gleichung 3.14 an:

$$k_{\dot{Q}} = 9.4 \cdot 10^{10} \cdot \exp\left(\frac{-24070 \text{ K}}{T}\right) \quad [s^{-1}] \quad (3.14)$$

Die langsamere Wärmefreisetzung ist auf den Abbrand der organischen Restverbindungen zurückzuführen. Für den untersuchten Temperaturbereich stimmt die Abbrandrate

Dieser Term stellt folglich hier eine Senke und in der Erhaltung der Monomere eine Quelle dar.

Die zweite Transportgleichung mit der Erhaltungsgröße $n_{\text{TEOS},2}$ wird benötigt, um die langsamer ablaufende Wärmefreisetzung wiederzugeben:

$$\frac{\partial(\rho \cdot n_{\text{TEOS},2})}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (U_j \cdot \rho \cdot n_{\text{TEOS},2}) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \frac{\partial n_{\text{TEOS},2}}{\partial x_j} \right] + Q_{n_{\text{TEOS},2}} \quad (3.17)$$

Dort, wo die Reaktion noch nicht begonnen hat, entspricht die Erhaltungsgröße ebenso wie $n_{\text{TEOS},1}$ dem unverbrannten Präkursor. In Bereichen, in denen die Reaktion nach Gleichung 3.15 bereits begonnen hat, kann die Erhaltungsgröße als die Summe des noch unverbrannten TEOS und der nicht vollständig verbrannten Restprodukte wie C_2H_5OH des Präkursors interpretiert werden. Die Größe $n_{\text{TEOS},2}$ entspricht jedoch keinem tatsächlichen physikalischen Teilchen, sondern wird zur Bilanzierung der Verbrennungsenthalpie verwendet.

Der Quellterm (Gleichung 3.18) wird mit der Wärmefreisetzungsrates des IVG gebildet:

$$Q_{n_{\text{TEOS},2}} = -n_{\text{TEOS},2} \cdot \rho \cdot k_{\dot{Q}} \left[m^{-3} \cdot s^{-1} \right] \quad (3.18)$$

Die Wärmefreisetzung des Präkursorabbrands wird durch einen Quellterm in der Energieerhaltung der kompressiblen RANS-Gleichungen wie folgt berücksichtigt:

$$Q_E = \underbrace{n_{\text{TEOS},2} \cdot \rho \cdot k_{\dot{Q}} \cdot M_{\text{TEOS}}/N_A \cdot \Delta h}_{-Q_{n_{\text{TEOS},2}}} \left[J \cdot m^{-3} \cdot s^{-1} \right] \quad (3.19)$$

mit

M_{TEOS}	$= 208.3275 \cdot 10^{-3}$	$[kg \cdot mol^{-1}]$	Molare Masse von TEOS
N_A	$= 6.022 \cdot 10^{23}$	$[mol^{-1}]$	Avogadro-Konstante
Δh	$= 25.4 \cdot 10^6$	$[J \cdot kg^{-1}]$	Verbrennungsenthalpie

3.3 Modellierung der Partikelentstehung in der Gasphase

Die Partikelmodellierung erfolgt in der Annahme, dass die Partikel ohne Schlupf der Strömung folgen. Dies ist bis zu einem Partikeldurchmesser von $D_P \lesssim 100 \text{ nm}$ gerechtfertigt, da die Stokeszahl $St \ll 1$ ist. Da auch der Massenanteil der Partikel sehr gering ist, kann jegliche Rückwirkung auf die Strömung vernachlässigt werden. Weiterhin wird, wie zuvor erwähnt, die molekulare Diffusion vernachlässigt. Ebenso bleiben thermophoretische Kräfte unberücksichtigt, da diese sehr viel kleiner sind als die turbulente Durchmischung. In der viskosen Unterschicht von Grenzschichten ist diese Annahme jedoch nicht gerechtfertigt, weshalb Partikelablagerung an Wänden nicht korrekt beschrieben werden kann.

3.3.1 Monomerbildung und homogene Keimbildung

Die Monomerbildung erfolgt durch die Verbrennung des Präkursors. Folglich entspricht der Quellterm für SiO_2 -Moleküle dem negativen Quellterm des Präkursors $n_{TEOS,1}$:

$$Q_{n_{SiO_2}} = n_{TEOS,1} \cdot \rho \cdot k_{SiO_2} = -Q_{n_{TEOS,1}} \quad [m^{-3} \cdot s^{-1}] \quad (3.20)$$

Da das SiO_2 molekular, also gasförmig vorliegt, lässt sich der entsprechende Partialdruck wie folgt aus der Teilchenanzahl n_{SiO_2} , der Gemischdichte ρ , der Boltzmann-Konstante k_B und der lokalen Temperatur T nach Gleichung 3.21 berechnen:

$$p_{SiO_2} = n_{SiO_2} \cdot \rho \cdot k_B \cdot T \quad (3.21)$$

Der Sättigungsdampfdruck wird über eine Ausgleichskurve (Gleichung 3.22) nach [109] bestimmt und gibt die experimentellen Daten von SAMSONOV [119] wieder:

$$\log(p') = -24.79 \cdot (\log T')^2 + 189.26 \cdot (\log T') - 353.66 \quad (3.22)$$

mit $T' = \frac{T-273.15 \text{ K}}{K}$ und $p' = \frac{p_{sat, SiO_2}}{Pa}$.

Dabei ist zu beachten, dass die Ausgleichskurve für Messwerte im Bereich von $T = 1400 - 3500 \text{ K}$ gebildet, und in Grad Celsius angegeben wurde. Unabhängig vom tatsächlichen Gültigkeitsbereich kann daher für Temperaturen $T \leq 237.15 \text{ K}$ kein Sättigungsdampfdruck berechnet werden.

Aus dem Partialdruck und dem Sättigungsdampfdruck lässt sich nach Gleichung 3.23 der Sättigungszustand des vorliegenden Dampfgemisches berechnen:

$$S = \frac{p_{SiO_2}}{p_{sat, SiO_2}(T)}. \quad (3.23)$$

Die Übersättigung S liegt im GiP-Reaktor bei Betriebsbedingungen im Bereich von $S = \mathcal{O}(10^3 \dots 10^6)$.

In Abhängigkeit von der Übersättigung S und der Oberflächenspannung σ ($\sigma_{SiO_2} = 0.3 \text{ N/m}$) kann auf Basis der klassischen Keimbildungstheorie der Durchmesser eines kritischen Clusters D_{Cl}^* und die Anzahl der Moleküle im Cluster n_{Cl}^* berechnet werden:

$$D_{Cl}^* = \frac{4 \cdot \sigma_{SiO_2} \cdot v_{SiO_2}}{k_B \cdot T \cdot \ln(S)}, \quad (3.24)$$

$$n_{Cl}^* = \frac{D_{Cl}^{*3} \cdot \pi}{6 \cdot v_{SiO_2}}. \quad (3.25)$$

Das Molekülvolumen v_{SiO_2} wird vereinfacht aus der Bulk-Dichte von Siliziumdioxid ($\rho_{SiO_2} \approx 2250 \text{ kg/m}^3$) abgeleitet:

$$v_{SiO_2} = \frac{M_{SiO_2}}{\rho_{SiO_2} \cdot N_A} \approx 4.4 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3. \quad (3.26)$$

Die Masse eines SiO_2 -Moleküls m_{SiO_2} kann dagegen relativ genau aus der molaren Masse bestimmt werden:

$$m_{SiO_2} = \frac{M_{SiO_2}}{N_A} \approx 9.98 \cdot 10^{-26} \text{ kg}. \quad (3.27)$$

Damit kann die Nukleationsrate nach FRIEDLANDER [38] berechnet werden:

$$J = \left[\frac{p_{SiO_2} \cdot n_{SiO_2} \cdot v_{SiO_2}}{k_B \cdot T} \right] \cdot \left[\frac{2 \cdot \sigma}{\pi \cdot m_{SiO_2}} \right]^{0.5} \cdot \exp \left[\frac{-16 \cdot \pi \cdot \sigma^3 \cdot v_{SiO_2}^2}{3 \cdot (k_B \cdot T)^3 \cdot (\ln S)^2} \right]. \quad (3.28)$$

Eine einfache Abschätzung der kritischen Clustergröße D_{CL}^* zeigt jedoch, dass diese im Auslegungszustand des GiP-Reaktors zu jedem Zeitpunkt kleiner ist als die Molekülgröße. Daher stellt jedes Molekül einen kritischen wachstumsfähigen Keim dar. Die Berechnung einer Nukleationsrate ist daher zur Simulation des Partikelwachstums im GiP-Reaktor nicht notwendig.

3.3.2 Koagulation

General Dynamic Equation

Die Änderung der Partikelanzahl wird durch die General Dynamic Equation (GDE) beschrieben (Gleichung 3.29, [38]).

$$\begin{aligned}
 & \underbrace{\frac{\partial[\rho \cdot n(v_P)]}{\partial t}}_{\text{Zeitliche Änderung}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} [U_j \cdot \rho \cdot n(v_P)]}_{\text{Konvektiver Term}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \frac{\partial n(v_P)}{\partial x_j} \right]}_{\text{Diffusiver Term}} = \\
 & \quad = \underbrace{J \cdot \rho \cdot \delta(v_p - v_p^*)}_{\text{Homogene Nukleation}} \\
 & \quad + \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \int_0^{v_P} \left(\beta(v_p - \bar{v}_p, \bar{v}_p) \cdot n(v_p - \bar{v}_p) \cdot n(\bar{v}_p) \right) d\bar{v}_p}_{\text{Quellterm: Koagulation kleinerer Partikel}} \\
 & \quad - \underbrace{n(v_p) \cdot \rho^2 \cdot \int_0^\infty \left(\beta(v_p, \bar{v}_p) \cdot n(\bar{v}_p) \right) d\bar{v}_p}_{\text{Senke: Koagulation mit anderen Partikeln}}
 \end{aligned} \tag{3.29}$$

In dem hier vorgestellten Ansatz steht die Erhaltungsgröße $n(v_P)$ für die Anzahl der Partikel mit dem sphärischen Partikelvolumen v_P . Neben der zeitlichen Änderung, dem konvektiven und dem diffusiven Transport treten auf der rechten Seite der Gleichung ein Term für die homogene Nukleation sowie ein positiver und ein negativer Quellterm für die Koagulationsprozesse der Partikel auf. Die δ -Funktion der homogenen Nukleation berücksichtigt nur Partikel, die exakt der Größe eines kritischen Clusters entsprechen. Heterogene Nukleation oder Oberflächenwachstum ist in der Koagulation enthalten. Der positive Quellterm integriert alle Stöße mit kleineren Partikeln, die exakt auf das Gesamtvolumen v_P führen. Alle Stöße der betrachteten Partikelgröße mit anderen Partikeln führen zu größeren Partikeln und stellen somit eine Senke dar.

Wie bereits in Kapitel 3.1.2 beschrieben, gibt es unterschiedliche Ansätze zur Lösung bzw. zur Modellierung dieser Gleichung. Die am Lehrstuhl für Aerodynamik und Strömungsmechanik erarbeiteten Modelle werden in Kapitel 3.4 vorgestellt. Eine Gegenüberstellung experimenteller und numerischer Ergebnisse erfolgt in Kapitel 3.5 für Versuche an einem Plasma-Reaktor sowie in Kapitel 3.6 für Versuche am GiP-Reaktor.

Koagulationskoeffizient β

Der Koagulationskoeffizient (oder auch die Kollisionsfrequenz) β wird in Abhängigkeit von der Knudsenzahl bestimmt. Diese ergibt sich aus dem Verhältnis der mittleren freien Weglänge λ und dem Partikeldurchmesser D_P nach Gleichung 3.30:

$$Kn = \frac{2 \cdot \lambda}{D_P} . \quad (3.30)$$

Die mittlere freie Weglänge

$$\lambda = \frac{32 \cdot \mu}{5 \cdot \pi \cdot \bar{c} \cdot \rho} \quad (3.31)$$

kann nach HÄNEL [56] aus der Viskosität μ , der mittleren Geschwindigkeit der Moleküle \bar{c} und der Dichte ρ ermittelt werden. Hierbei kann die mittlere Geschwindigkeit der Moleküle \bar{c}

$$\bar{c} = \left(\frac{8}{\pi} \cdot R \cdot T \right)^{0.5} \quad (3.32)$$

aus der Temperatur T und der spezifischen Gaskonstante R berechnet werden.

Den Koagulationskoeffizienten zweier Partikel i und j ermittelt man für die freie Molekularströmung ($Kn \gg 1$) nach FRIEDLANDER [38] in Abhängigkeit der beiden Durchmesser D_i und D_j , der Temperatur T , der Dichte der Partikel ρ_{SiO_2} und der Boltzmann-Konstante k_B nach Gleichung 3.33:

$$\beta_{i,j}^{FM} = \left(\frac{3 \cdot k_B \cdot T}{\rho_{SiO_2}} \right)^{0.5} \cdot \left(\frac{1}{D_i^3} + \frac{1}{D_j^3} \right)^{0.5} \cdot (D_i + D_j)^2 . \quad (3.33)$$

Im Kontinuumsbereich ($Kn \ll 1$) hingegen gilt

$$\beta_{i,j}^{Ko} = \frac{2 \cdot k_B \cdot T}{3 \cdot \mu} \cdot \left(\frac{1}{D_i} + \frac{1}{D_j} \right) \cdot (D_i + D_j) . \quad (3.34)$$

Im Transitionsbereich kann der Koagulationskoeffizient nach der Interpolationsvorschrift von DAHNEKE [29] aus

$$\beta^{Da} = \beta^{Cu} \frac{1 + Kn_D}{1 + 2 \cdot Kn_D + 2 \cdot Kn_D^2} \quad \text{mit} \quad Kn_{Da} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\beta^{Cu}}{\beta^{FM}} \quad (3.35)$$

ohne hohen Rechenaufwand bestimmt werden.

Der Koagulationskoeffizient β^{Cu} entspricht dem Koagulationskoeffizienten für den Kontinuumsbereich, ist jedoch um den Cunningham'schen Slip-Korrektur-Faktor erweitert:

$$\beta_{i,j}^{Cu} = \frac{2 \cdot k_B \cdot T}{3 \cdot \mu} \cdot \left(\frac{Cu_i}{D_i} + \frac{Cu_j}{D_j} \right) \cdot (D_i + D_j) . \quad (3.36)$$

Nach OTTO *et al.* [98] kann dieser wie folgt berechnet werden:

$$Cu = 1 + 1.591 \cdot Kn . \tag{3.37}$$

Der Einfluss der Turbulenz auf die Kollisionsfrequenz wird nach FRIEDLANDER [38] in Abhängigkeit von der turbulenten Dissipation ε_t berechnet. Der turbulente Koagulationskoeffizient β^{turb} (Gleichung 3.38) wird additiv superponiert.

$$\beta_{i,j}^{turb} = 1.3 \cdot \left(\frac{\varepsilon_t \cdot \rho}{\mu} \right)^{0.5} \cdot \left(\frac{D_i}{2} + \frac{D_j}{2} \right)^3 . \tag{3.38}$$

Dies ist allerdings für die gewünschte Partikelgröße von $D_P = 20 - 40 \text{ nm}$ nicht notwendig, da der Einfluss der Turbulenz in diesem Größenbereich vernachlässigbar ist. Abbildung 3.7 zeigt die Koagulationskoeffizienten für die freie Molekularströmung (blau), den Transitionsbereich nach Dahneke (rot) und für den Kontinuumsbereich (grün) in Abhängigkeit von der Partikelgröße. Zur Veranschaulichung des Turbulenzeinflusses sind zusätzlich die turbulenten Koagulationskoeffizienten (lila) für typische ε_t -Werte im GiP-Reaktor aufgetragen. Im Stoßbereich ist die Dissipation in der Größenordnung von $\varepsilon_t = \mathcal{O}(10^8 \text{ m}^2\text{s}^{-3})$, die Partikel hingegen sind in der Größenordnung von $D_P \approx 1 - 2 \text{ nm}$. Im Reaktor werden die Partikel zwar größer, allerdings klingt auch die Dissipation stark ab und erreicht Werte im Bereich von $\varepsilon_t = \mathcal{O}(10^2 \dots 10^4 \text{ m}^2\text{s}^{-3})$.

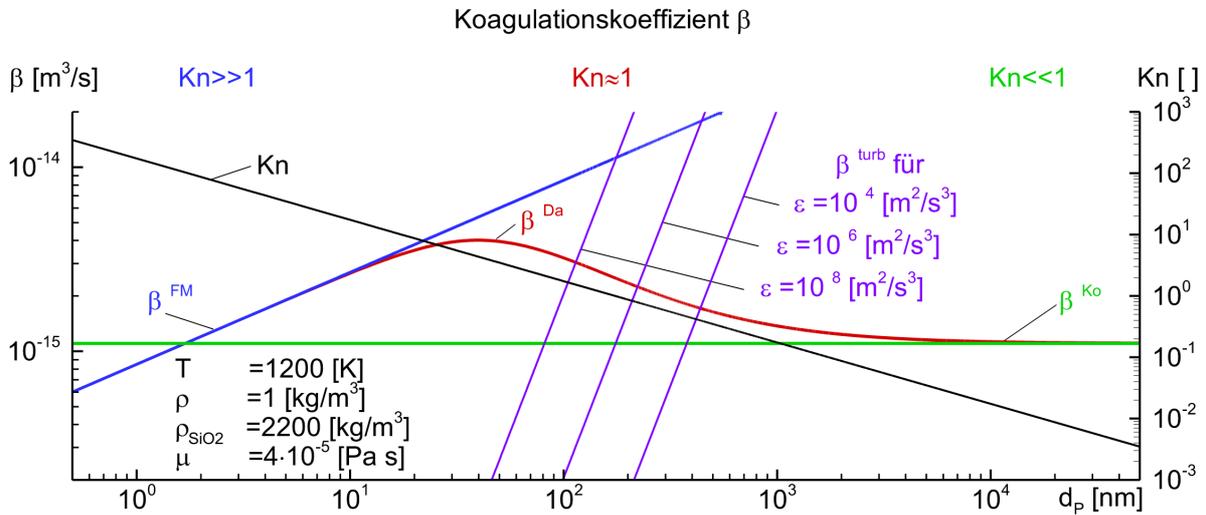


Abbildung 3.7: Vergleich der Koagulationskoeffizienten in Abhängigkeit von der Knudsenzahl. Dargestellt ist der Koagulationskoeffizient für zwei gleich große Partikel bei $T=1200 \text{ K}$, $\rho=1 \text{ kg/m}^3$, $\mu=4 \cdot 10^{-5} \text{ kg/(m} \cdot \text{s)}$ und $\rho_{SiO_2}=2200 \text{ kg/m}^3$ für die freie Molekularströmung ($Kn \gg 1$, blau), den Transitionsbereich nach Dahneke (rot), und den Kontinuumsbereich ($Kn \ll 1$, grün). Der turbulente Koagulationskoeffizient β_{turb} ist für verschiedene ε_t aufgetragen. Die Knudsenzahl ist schwarz dargestellt.

3.3.3 Sintermechanismen

Die vorangegangene Berechnung des Koagulationskoeffizienten β erfolgte unter der Annahme sphärischer Partikel. Dies ist jedoch nur zulässig, wenn die Partikel instantan oder zumindest schneller zu einem runden Partikel verschmelzen als das Partikelpaar auf einen neuen Partikel trifft. Dies ist der Fall, wenn die charakteristische Koaleszenzzeit sehr viel kleiner ist als die charakteristische Koagulationszeit ($\tau_{K_{oal}} \ll \tau_{K_{oag}}$, siehe Kapitel 3.1.1).

Die charakteristische Koagulationszeit kann nach Gleichung 3.39 abgeschätzt werden:

$$\frac{1}{\tau_{K_{oag}}} = -\frac{1}{n} \frac{dn}{dt} . \quad (3.39)$$

Betrachtet man ein monodisperses Aerosol, so kann aus der GDE folgende Beziehung abgeleitet werden:

$$\rho \cdot \frac{dn}{dt} = -\frac{1}{2} \beta \cdot \rho^2 \cdot n^2 \quad \Rightarrow \quad \tau_{K_{oag}} = \frac{2}{\beta \cdot \rho \cdot n} . \quad (3.40)$$

Die Abschätzung einer charakteristischen Sinterzeit ist jedoch nicht ohne Weiteres möglich, da verschiedene Mechanismen wirken. FRENKEL [36] erarbeitete erstmals ein geometrisches Modell für das Zusammenfließen zweier Partikel durch viskoses Fließen. Ausgehend von zwei Partikeln mit dem Anfangsradius a_0 bildet sich während des Fließprozesses ein runder Sinterhals mit zunehmendem Radius R (siehe Abbildung 3.8). Erreicht dieser die Größe a_f , so ist der Prozess abgeschlossen.

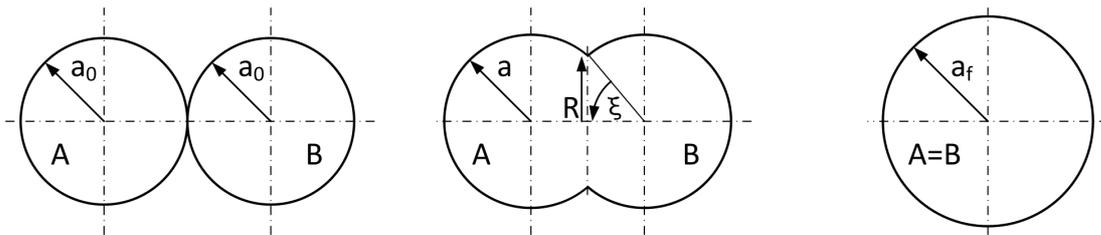


Abbildung 3.8: Geometrisches Modell zur Beschreibung der Sinterstadien [73]

Unter der Annahme, dass die frei werdende Energie aus der Verringerung der Oberfläche durch das viskose Fließen im Partikel dissipiert wird, kann nach FRENKEL [36] folgende Beziehung für die zeitliche Entwicklung des Sinterstadiums hergeleitet werden:

$$\left(\frac{R}{a_0}\right)^2 = \frac{\sigma}{a_0 \cdot \mu} \cdot t . \quad (3.41)$$

Die charakteristische Koaleszenzzeit für zwei gleich große Partikel beträgt:

$$\tau_{Koaal} = \frac{2 \cdot \mu \cdot a_f}{\sigma} [s]. \quad (3.42)$$

Die benötigten Parameter sind die Oberflächenspannung σ und die Viskosität μ . Letztere ist stark temperaturabhängig und kann über die Arrheniusgleichung

$$\mu_{SiO_2} = 1.9 \cdot 10^{-8} \cdot \exp\left(\frac{6.1 \cdot 10^4 [K]}{T}\right) [Pa \cdot s] \quad (3.43)$$

beschrieben werden [59].

Das Modell von FRENKEL [36] dient bis heute als Basis für die Entwicklung zahlreicher weiterer Modelle, die jeweils verschiedene Sintermechanismen berücksichtigen. Ein umfangreicher Überblick ist der Arbeit von KIRCHHOF [73] zu entnehmen. Alle von ihm aufgeführten Sintermechanismen basieren auf einem Potenzansatz der Form:

$$\left(\frac{R}{a_0}\right)^m = \frac{f(T)}{a_0^n} \cdot t. \quad (3.44)$$

Die jeweiligen Sintermechanismen und die verwendeten Exponenten m und n der jeweiligen Autoren können Tabelle 3.1 entnommen werden.

Ein erstes Modell zur Berechnung des Partikelwachstums durch Koagulation und Koaleszenz, basierend auf der charakteristischen Koaleszenzzeit von FRENKEL [36], wurde von KOCH und FRIEDLANDER [75] vorgestellt. Sie führen ein lineares Ratenmodell zur Reduktion der Partikeloberfläche s ein, wobei s_f die Oberfläche des vollständig verschmolzenen Partikels ist:

$$\frac{ds}{dt} = -\frac{1}{\tau_{Koaal}} \cdot (s - s_f). \quad (3.45)$$

Eine Schwäche des Modells besteht darin, dass die Sinterzeit stark temperaturabhängig ist. Weiterhin ist fraglich, ob die für das Bulk-Material ermittelten Stoffwerte für die Oberflächenspannung und die Viskosität bei Partikeln in der Größenordnung weniger Nanometer ihre Gültigkeit behalten. Der Vergleich mit experimentellen Daten offenbart, dass die charakteristische Koaleszenzzeit im Allgemeinen stark überschätzt wird.

Ansätze zur Verbesserung des Modells wurden beispielsweise von ULRICH und SUBRAMANIAN [138], LEHTINEN *et al.* [86] und TSANTILIS und PRATSINIS [137] vorgestellt. Die Modelle enthalten jedoch Kalibrationsfaktoren und (teils) willkürlich gewählte Modellkonstanten. Prädiktive Berechnungen des Aggregationsgrades experimentell erzeugter Partikel sind daher bislang nicht gelungen.

Mechanismus	m	n	Autor(en)
Viskoses Fließen	2	1	FRENKEL [36], RUMPF <i>et al.</i> [117]
Verdampfung und Rekondensation	3	2	KUCZYNSKI [81], KINGERY und BERG [72]
	7	4	PINES [107]
	5	3	HOBBS und MASON [61]
Oberflächendiffusion $\pi\rho \gg \sqrt{D_S\tau_s}$ $\pi\rho \ll \sqrt{D_S\tau_s}$	7	4	KUCZYNSKI [81], ROCKLAND [115]
	5	3	CABRERA [20]
	6	4	PINES [107]
	5	3	SCHWED [124]
	3	2	SCHWED [124]
Volumendiffusion aus dem Volumen von der Oberfläche	4.4	3	JOHNSON [69]
	5	3	KUCZYNSKI [82], CABRERA [20]
	4	3	COBLE [25]
	5	3	ROCKLAND [116]
	4	3	ROCKLAND [116]
Korngrenzendiffusion	6	4	ROCKLAND [116], COBLE [25]
	6.2	4	JOHNSON [69]

Tabelle 3.1: Verschiedene Sintermechanismen und die jeweiligen Kinetikexponenten für Gleichung 3.44 nach KIRCHHOF [73]

3.4 Modelle zur Berechnung der PartikelgröÙe

3.4.1 Bimodal-Monodisperses Modell

Das bimodal-monodisperse Partikelmodell stellt das einfachste und numerisch stabilste Modell mit dem geringsten Rechenaufwand dar. Die erste Mode bilanziert die Anzahl an Monomeren (SiO_2 -Molekülen), die zweite Mode stellt die Klasse der Partikel dar. Zur Berechnung eines mittleren Partikeldurchmessers wird das in dieser Klasse bestehende Gesamtvolumen an SiO_2 -Molekülen und die Anzahl der Partikel bilanziert. Dazu werden folgende Annahmen getroffen:

- Treffen zwei Monomere aufeinander, so bleiben diese aneinander haften und stellen einen Partikel dar. Das Volumen beider Moleküle geht in die Partikelklasse über, die Anzahl der Partikel steigt um eins.
- Trifft ein Monomer auf einen Partikel, so bleibt dieser am Partikel haften. Das Volumen des Moleküls geht in die Partikelklasse über, die Anzahl der Partikel bleibt konstant.
- Treffen zwei Partikel aufeinander, so verschmelzen diese instantan zu einem Partikel. Das Volumen der Partikelklasse bleibt erhalten, die Anzahl reduziert sich um eins.

Der vollständige Quellterm für die Bilanzierung der Monomeranzahl setzt sich wie folgt zusammen:

$$Q_{n_{SiO_2}} = \underbrace{-Q_{n_{TEOS,1}}}_{\text{Abbrand}} - 2 \cdot \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2, SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2}_{\text{Stoß Monomer-Monomer}} - \underbrace{\rho^2 \cdot \beta_{SiO_2, P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P}_{\text{Stoß Monomer-Partikel}} . \quad (3.46)$$

Der erste Term stellt die aus der Verbrennung des Präkursors entstehenden Monomere dar. Der zweite Term beschreibt die Häufigkeit der Stöße zwischen zwei Monomeren. Dabei ist zu beachten, dass es sich um Stöße innerhalb derselben Klasse handelt. Eine Doppelzählung der Stöße wird durch den Faktor $1/2$ verhindert. Je Stoß gehen jedoch zwei Moleküle in die Klasse der Partikel über. Der dritte Term beschreibt die Anzahl der Stöße zwischen Monomeren und Partikeln. Je Stoß geht nur ein Monomer in die Klasse der Partikel über.

Ähnlich setzt sich der Quellterm für die Bilanzierung der Partikelanzahl zusammen:

$$Q_{n_P} = + \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2, SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2}_{\text{Stoß Monomer-Monomer}} - \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P, P} \cdot n_P^2}_{\text{Stoß Partikel-Partikel}} - \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P, P}^{turb} \cdot n_P^2}_{\text{Stoß Partikel-Partikel}} . \quad (3.47)$$

Der erste Term stellt die durch den Stoß zweier Monomere entstehenden Partikel dar. Die durch Brownsche Molekularbewegung hervorgerufenen Stöße zwischen Partikeln werden durch den zweiten Term und die turbulenzinduzierten Stöße durch den dritten Term beschrieben. Die Stöße zwischen Monomeren und Partikeln bleiben unberücksichtigt, da sich dadurch nur das Gesamtvolumen, nicht aber die Anzahl der Partikel ändert.

Entsprechend setzt sich der Quellterm für das Gesamtvolumen wie folgt zusammen:

$$Q_{V_P} = +2 \cdot \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2, SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2 \cdot v_{SiO_2}}_{\text{Stoß Monomer-Monomer}} + \underbrace{\rho^2 \cdot \beta_{SiO_2, P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P \cdot v_{SiO_2}}_{\text{Stoß Monomer-Partikel}} . \quad (3.48)$$

Durch den Stoß zweier Monomere geht das Volumen beider in das Gesamtvolumen der Partikel über. Der Stoß Monomer-Partikel erhöht das Gesamtvolumen um ein SiO_2 -Molekül und der Stoß zweier Partikel hat keinen Einfluss auf das Gesamtvolumen.

Das mittlere Volumen eines einzelnen Partikels \bar{v}_P kann aus dem Gesamtvolumen V_P und der Partikelanzahl n_P ermittelt werden:

$$\bar{v}_P = \frac{V_P}{n_P} . \quad (3.49)$$

Unter der Annahme sphärischer Partikel wird daraus der mittlere Durchmesser \bar{D}_P bestimmt.

$$\bar{D}_P = \left(\frac{6 \cdot \bar{v}_P}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} . \quad (3.50)$$

Der Koagulationskoeffizient β_{SiO_2, SiO_2} wird nach Gleichung 3.33 berechnet, da die Moleküle entsprechend klein sind (siehe Abb. 3.7). Die Koagulationskoeffizienten $\beta_{SiO_2, P}$ und $\beta_{P, P}$ werden nach Gleichung 3.35 berechnet. Der Durchmesser der Monomere wird vereinfacht aus dem Molekülvolumen v_{SiO_2} bestimmt, der Partikeldurchmesser wird nach Gleichung 3.50 berechnet. Da der turbulente Koagulationskoeffizient erst bei größeren Durchmessern zur Geltung kommt, wird dieser nur bei Stößen zwischen zwei Partikeln berücksichtigt.

3.4.2 Bimodal-Monodisperses Modell unter Berücksichtigung der Nukleation

Zur Berechnung des Partikeldurchmessers unter Berücksichtigung der Nukleation wird das bimodal monodisperse Modell leicht abgewandelt. Aus dem lokalen Partialdruck p_{SiO_2} und dem Sättigungsdampfdruck p_{sat,SiO_2} wird nach Gleichung 3.23 die Übersättigung des SiO_2 -Dampfs ermittelt. Liegt keine Übersättigung vor ($S < 1$), so tritt keine Nukleation oder Koagulation ein und die Monomere bleiben erhalten. Lediglich die aus der Verbrennung des Präkursors entstehenden Monomere dürfen im Quellterm berücksichtigt werden.

Liegt hingegen das SiO_2 übersättigt vor ($S > 1$), so kann nach Gleichung 3.24 der Durchmesser eines kritischen Clusters D_{Cl}^* bzw. nach Gleichung 3.25 die Anzahl der Moleküle in einem kritischen Cluster n_{Cl}^* bestimmt werden.

Enthält ein kritischer Cluster weniger als zwei Moleküle ($n_{Cl}^* < 2$), so stellt jedes Molekül einen wachstumsfähigen Keim dar, da die Koagulation zweier Moleküle bereits zu einem stabilen Keim führt, der nicht mehr zerfällt. Der Quellterm zur Bilanzierung der Monomeranzahl entspricht folglich dem Quellterm des monodispersen Modells (siehe Gleichung 3.46).

Besteht ein kritischer Cluster jedoch aus mindestens zwei Molekülen ($n_{Cl}^* \geq 2$), so muss anstelle der Koagulation zweier Monomere eine Nukleationsrate J nach Gleichung 3.28 berechnet werden. In den Quellterm der Monomeranzahl geht demnach das Produkt aus der Nukleationsrate J und der im kritischen Cluster vorliegenden Moleküle n_{Cl}^* ein.

Der vollständige Quellterm zur Bilanzierung der Monomeranzahl lautet:

$$Q_{n_{SiO_2}} = \begin{cases} -Q_{n_{TEOS,1}} & , S < 1. \\ -Q_{n_{TEOS,1}} - J \cdot \rho \cdot n_{Cl}^* - \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P & , S > 1, n_{Cl}^* \geq 2. \\ -Q_{n_{TEOS,1}} - \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2 - \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P & , S > 1, n_{Cl}^* < 2. \end{cases} \quad (3.51)$$

Dementsprechend muss auch der Quellterm für die Bilanzierung der Partikelanzahl modifiziert werden:

$$Q_{n_P} = \begin{cases} -\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P} \cdot n_P^2 - \frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P}^{turb} \cdot n_P^2 & , S < 1. \\ -\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P} \cdot n_P^2 - \frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P}^{turb} \cdot n_P^2 + J \cdot \rho & , S > 1, n_{Cl}^* \geq 2. \\ -\frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P} \cdot n_P^2 - \frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{P,P}^{turb} \cdot n_P^2 + \frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2 & , S > 1, n_{Cl}^* < 2. \end{cases} \quad (3.52)$$

Die Abnahme der Partikelanzahl durch Koagulation tritt unabhängig vom Sättigungszustand ein. Tritt im übersättigten Zustand Nukleation auf, so muss die Nukleationsrate J im Quellterm der Partikelanzahl berücksichtigt werden. Ist die Phase dagegen derart übersättigt, dass bereits jedes Molekül einen wachstumsfähigen Keim darstellt, so entspricht der Quellterm wieder dem des monodispersen Modells (siehe Gleichung 3.47).

Der Quellterm zur Bilanzierung des Partikelvolumens ist unabhängig vom Sättigungszustand, da der Stoß zwischen zwei Partikeln nicht in die Bilanz eingeht:

$$Q_{VP} = \begin{cases} +\rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P \cdot v_{SiO_2} + J \cdot \rho \cdot n_{Cl}^* \cdot v_{SiO_2} & , n_{Cl}^* \geq 2. \\ +\rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,P} \cdot n_{SiO_2} \cdot n_P \cdot v_{SiO_2} + 2 \cdot \frac{1}{2} \cdot \rho^2 \cdot \beta_{SiO_2,SiO_2} \cdot n_{SiO_2}^2 \cdot v_{SiO_2} & , n_{Cl}^* < 2. \end{cases} \quad (3.53)$$

Der mittlere Partikeldurchmesser $\overline{D_P}$ kann ebenso wie für das bimodal-monodisperse Modell nach Gleichung 3.50 berechnet werden.

Dieses Modell wurde speziell zur Überprüfung experimenteller Ergebnisse im Plasma-Reaktor des IVG Duisburg implementiert. Dort treten lokal Temperaturen von bis zu $T \approx 3000 \text{ K}$ auf, wodurch die Übersättigung stark abnimmt. Bei derart heißen Zonen sind auch die Verdampfung kleiner Partikel und die Fragmentation von Clustern denkbar. Das bleibt in diesem Modell jedoch unberücksichtigt.

3.4.3 Bimodal-Polydisperses Modell

Das bimodal-polydisperse Modell basiert auf der Momentenmethode. Wendet man diese zur Beschreibung der Verteilung des Partikeldurchmessers an, so lautet die Definition des k -ten Moments:

$$M_k = \int_0^\infty \left(D_P^k \cdot N_D(D_P) \right) dD_P . \quad (3.54)$$

N_D stellt hierbei die Anzahldichtefunktion des Partikeldurchmessers dar. Da in Experimenten häufig eine logarithmische Normalverteilung des Partikeldurchmessers nachgewiesen werden konnte, kann die Anzahldichtefunktion unter der Annahme einer solchen Verteilung nach FRIEDLANDER [38] wie folgt ersetzt werden:

$$N_D(D_P) = \frac{n_\infty}{\sqrt{2 \cdot \pi} \cdot D_P \cdot \ln \sigma_g} \exp \left[-\frac{(\ln D_P - \ln D_{Pg})^2}{2 \cdot (\ln \sigma_g)^2} \right] . \quad (3.55)$$

Dabei ist D_{Pg} der geometrisch mittlere Durchmesser, n_∞ die Anzahldichte der Partikel und $\sigma_g = \exp(\sigma)$ die geometrische Standardabweichung.

Durch geeignete Substitution kann das Integral für das k -te Moment berechnet und wie folgt umgeformt werden:

$$M_k = n_\infty \cdot D_{Pg}^k \cdot \exp \left[\frac{k^2}{2} \cdot (\ln \sigma_g)^2 \right] . \quad (3.56)$$

Wählt man nun zur Beschreibung der Partikeleigenschaften das 0-te, 3-te und 6-te Moment, so ergeben sich für die Anzahldichte n_∞ , den geometrisch mittleren Durchmesser D_{Pg} und die geometrische Standardabweichung σ_g folgende Beziehungen:

$$\begin{aligned} n_\infty &= M_0, \\ D_{Pg} &= \frac{M_3^{2/3}}{M_0^{1/2} \cdot M_6^{1/6}}, \\ \sigma_g &= \exp \left[\frac{1}{3} \cdot \sqrt{\ln \left(\frac{M_6 \cdot M_0}{M_3^2} \right)} \right]. \end{aligned} \quad (3.57)$$

Um die Partikeleigenschaften zu berechnen, muss folglich für diese drei Momente eine Transportgleichung gelöst werden (siehe Gleichung 3.2). Der Quellterm für das k -te

Moment lautet:

$$\begin{aligned}
 Q_{M_k} = & \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \beta_{1,1} \cdot n_1^2 \cdot \rho^2 \cdot D_2^k}_{\text{Stoß Monomer-Monomer}} + \underbrace{n_1 \cdot \int_0^\infty \left(\beta_{1,P} \cdot \left[(D_1^3 + D_P^3)^{k/3} - D_P^k \right] \cdot n_P \cdot \rho^2 \right)}_{\text{Stoß Monomer-Partikel}} dD_P \\
 & + \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \int_0^\infty \int_0^\infty \left(\beta_{P_1,P_2} \cdot \left[(D_{P_1}^3 + D_{P_2}^3)^{k/3} - D_{P_1}^k - D_{P_2}^k \right] \cdot n_{P_1} \cdot n_{P_2} \cdot \rho^2 \right)}_{\text{Stoß Partikel-Partikel}} dD_{P_1} dD_{P_2}.
 \end{aligned} \tag{3.58}$$

Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde hier der Index „ SiO_2 “ für Monomere durch den Index „1“ ersetzt. Der Index „2“ steht für Dimere, „ P_1 “ und „ P_2 “ seien Partikel unterschiedlicher Größe.

Der Quellterm für die Monomerklasse lautet:

$$Q_{n_1} = \underbrace{-Q_{n_{TEOS,1}}}_{\text{Abbrand}} - 2 \cdot \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \beta_{1,1} \cdot \rho^2 \cdot n_1^2}_{\text{Stoß Monomer-Monomer}} - \underbrace{n_1 \cdot \int_0^\infty \left(\beta_{1,P} \cdot n_P \cdot \rho^2 \right)}_{\text{Stoß Monomer-Partikel}} dD_P. \tag{3.59}$$

Da der Koagulationskoeffizient β_{P_1,P_2} für den Transitionsbereich zwischen freier Molekülströmung und Kontinuumsbereich nicht explizit berechnet werden kann, wird stattdessen der gesamte Quellterm für den Stoß Partikel-Partikel interpoliert [98]:

$$\left. \frac{\partial M_k}{\partial t} \right|_{P_1,P_2} = \left. \frac{\partial M_k}{\partial t} \right|_{P_1,P_2}^{Cu} \cdot \frac{1 + Kn_{M_k}}{1 + f(\sigma_g) \cdot Kn_{M_k} + 2 \cdot Kn_{M_k}^2} \tag{3.60}$$

mit

$$Kn_{M_k} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\left. \frac{\partial M_k}{\partial t} \right|_{P_1,P_2}^{Cu}}{\left. \frac{\partial M_k}{\partial t} \right|_{P_1,P_2}^{FM}} \tag{3.61}$$

und

$$f(\sigma_g) = 2 + 0.7 \cdot (\ln \sigma_g)^2 + 0.85 \cdot (\ln \sigma_g)^3. \tag{3.62}$$

Gleicherweise wird mit dem Stoß Monomer-Partikel verfahren.

Das Modell ist somit vollständig beschrieben. Die einzelnen Zwischenschritte können der Arbeit von AL-HASAN [5] entnommen werden.

3.4.4 Sektionales Modell

Das sektionale Modell basiert auf der Arbeit von HOUNSLOW *et al.* [62]. Die Unterteilung in einzelne Sektionen erfolgt auf Basis einer festen Anzahl an Molekülen. Ein Partikel der Sektion (oder Klasse) i enthält 2^{i-1} SiO_2 -Moleküle und weist somit das doppelte Partikelvolumen der Klasse $i - 1$ auf:

$$v_i = v_{SiO_2} \cdot 2^{i-1} . \quad (3.63)$$

Der Durchmesser der Partikel steigt folglich von Klasse zu Klasse um den Faktor $\sqrt[3]{2}$.

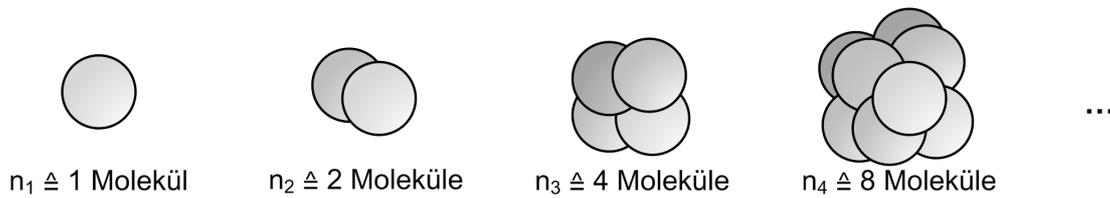


Abbildung 3.9: Unterteilung der Partikelklassen nach HOUNSLOW *et al.* [62]

Der Vorteil dieser starren Partikelklassen ist, dass nur die Anzahl der Partikel in jeder Klasse bilanziert werden muss. Eine zweite Transportgleichung für das Partikelvolumen, ähnlich dem bimodal-monodispersen Modell, ist nicht notwendig.

Der Quellterm für die Partikelanzahlkonzentration n_i jeder Klasse i lässt sich nach HOUNSLOW *et al.* [62] wie folgt beschreiben¹:

$$\begin{aligned}
 Q_{n_i} = & \underbrace{+n_{i-1} \cdot \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \cdot \beta_{i-1,j} \cdot n_j \cdot \rho^2}_{1} + \underbrace{\frac{1}{2} \cdot \beta_{i-1,i-1} \cdot n_{i-1}^2 \cdot \rho^2}_{2} \\
 & - \underbrace{n_i \cdot \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \cdot \beta_{i,j} \cdot n_j \cdot \rho^2}_{3} - \underbrace{n_i \cdot \sum_{j=i}^{\infty} \beta_{i,j} \cdot n_j \cdot \rho^2}_{4} . \quad (3.64)
 \end{aligned}$$

Es bestehen folglich vier Koagulationsmechanismen:

1. Der erste Term beschreibt die Koagulation der Klasse $i - 1$ mit kleineren Partikeln der Klassen $\{1, \dots, i - 2\}$. Diese Stöße treten anteilig als Quelle der Klasse i auf.

¹ Die Originalarbeit enthält einen Tippfehler, welcher hier korrigiert wurde. Der Endwert der ersten Summe $i - 1$ wurde durch $i - 2$ ersetzt.

2. Der zweite Term beschreibt die Koagulation innerhalb der Klasse $i - 1$. Diese Stöße führen zu einem vollständigen Übergang in die Klasse i und treten somit als Quelle auf. Der Faktor $1/2$ ist jedoch notwendig, um eine Doppelzählung der Stöße innerhalb einer Klasse zu verhindern.
3. Der dritte Term beschreibt die Koagulation der Klasse i mit kleineren Partikeln der Klassen $\{1, \dots, i - 1\}$. Diese Stöße treten nur anteilig als Senke auf.
4. Der vierte Term beschreibt die Koagulation der Klasse i mit gleichen und größeren Partikeln der Klassen $\{i, \dots, \infty\}$. Für den Stoß innerhalb der Klasse i wird der Faktor $1/2$ dadurch aufgehoben, dass zwei Partikel die Klasse verlassen.

Die erste Klasse besteht aus Monomeren. Daher kann diese nicht mit kleineren Partikeln koagulieren, und der Quellterm reduziert sich zu

$$Q_{n_1} = -Q_{n_{\text{TEOS},1}} - n_1 \cdot \sum_{j=1}^K \beta_{1,j} \cdot n_j \cdot \rho^2 . \quad (3.65)$$

Der Quellterm für die Klasse der Dimere lautet:

$$Q_{n_2} = +\frac{1}{2} \cdot \beta_{1,1} \cdot n_1^2 \cdot \rho^2 - n_2 \cdot \frac{1}{2} \cdot \beta_{2,1} \cdot n_1 \cdot \rho^2 - n_2 \cdot \sum_{j=2}^K \beta_{2,j} \cdot n_j \cdot \rho^2 . \quad (3.66)$$

Da nur eine endliche Anzahl K an Partikelklassen benötigt wird, muss auch der Quellterm für die letzte Klasse modifiziert werden. Der dritte Term tritt nicht als Senke, sondern als Quelle auf. Dadurch gehen die Klassen $\{1, \dots, K - 1\}$ durch einen Stoß mit der Klasse K vollständig in die Klasse K über und treten dort anteilig als Quelle auf. Der vierte Term verschwindet, da keine größeren Klassen existieren.

Der Quellterm für die letzte Partikelklasse lautet folglich:

$$Q_{n_K} = n_{K-1} \cdot \sum_{j=1}^{K-2} 2^{j-K+1} \cdot \beta_{K-1,j} \cdot n_j \cdot \rho^2 + \frac{1}{2} \cdot \beta_{K-1,K-1} \cdot n_{K-1}^2 \cdot \rho^2 + n_K \cdot \sum_{j=1}^{K-1} 2^{j-K} \cdot \beta_{j,K} \cdot n_j \cdot \rho^2 . \quad (3.67)$$

3.5 Simulation des Partikelwachstums im Plasmareaktor

Neben der Bestimmung der Zündverzugszeiten möglicher Präkursoren für den GiP-Reaktor wurden von TP3 Experimente zum Partikelwachstum in einem Plasmareaktor durchgeführt. Ziel war es, die maßgebenden Einflussparameter wie Reaktordruck, Reaktortemperatur und Präkursormassenstrom zu untersuchen. Trotz der grundlegend unterschiedlichen Betriebsbedingungen gegenüber dem GiP-Reaktor werden die experimentellen Ergebnisse von TP3 nun zur Validierung des bimodal-monodispersen Partikelmodells (Kapitel 3.4.1) herangezogen. Dadurch soll untersucht werden, ob die Trends des Experiments reproduziert und gegebenenfalls erklärt werden können. Der Aufbau des Plasmareaktors und ausgewählte Ergebnisse werden in Kapitel 3.5.1 gezeigt. Eine ausführliche Beschreibung der Experimente und weitere Ergebnisse können der Arbeit von ABDALI *et al.* [3] entnommen werden. In Kapitel 3.5.2 werden die Simulationsergebnisse des bimodal-monodispersen Partikelmodells dargestellt. Auf den Einfluss der Nukleation wird in Kapitel 3.5.3 eingegangen.

3.5.1 Aufbau des Plasmareaktors und experimentelle Ergebnisse

Die Regelung des Präkursormassenstroms erfolgt am Plasmareaktor über ein CEM-System (Controlled Evaporation and Mixing). Das flüssige TEOS wird mit einem Argonmassenstrom gemischt und verdampft. Die nachfolgende Zuleitung zum Reaktor ist auf 370 K aufgeheizt um eine Re-Kondensation zu vermeiden. Kurz vor der Einspeisung wird der Oxidator, ein Sauerstoff-Argon-Gemisch, zugefügt. Die Reinheit der Gase beträgt 99.999%, die des Präkursors beträgt 98%. Das Gemisch wird über eine Metalldüse

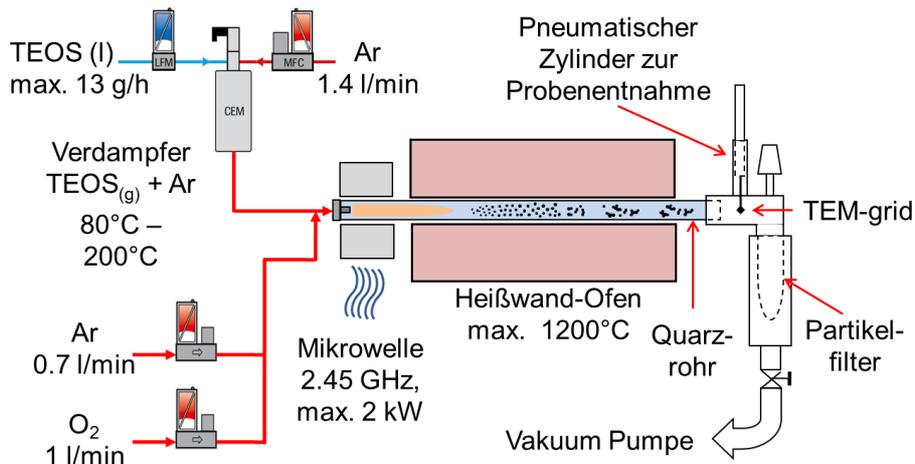


Abbildung 3.10: Versuchsaufbau des mikrowellenbetriebenen Plasmareaktors [3]

in ein Quarzrohr eingespeist und dort durch fokussierte Mikrowellenstrahlung erhitzt. Die zugeführte Leistung in den hier gezeigten Experimenten ist $P = 200 \text{ W}$. Dies hat zur Folge, dass ein Teil des Trägergases innerhalb der Antenne in die Plasmaphase übergeht. Aufgrund der hohen statischen Temperatur erfolgt ein nahezu instantaner Abbrand des Präkursors. Anschließend kann über einen optionalen Heißwand-Ofen eine konstante Wandtemperatur vorgegeben werden, sodass das anschließende Partikelwachstum bei homogenen Bedingungen abläuft. Nach dem Heißwand-Ofen werden die Partikel auf einem TEM-Netz (Transmissionselektronenmikroskopie) abgeschieden und anschließend untersucht. Die Beladungszeit beträgt jeweils 0.5 s . Die restlichen Partikel werden auf einem nachfolgenden Partikelfilter abgeschieden. Eine Skizze des Versuchsaufbaus kann Abb. 3.10 entnommen werden. Ein Foto des Plasmareaktors im Betrieb (ohne Heißwand-Ofen) ist in Abb. 3.11 dargestellt.

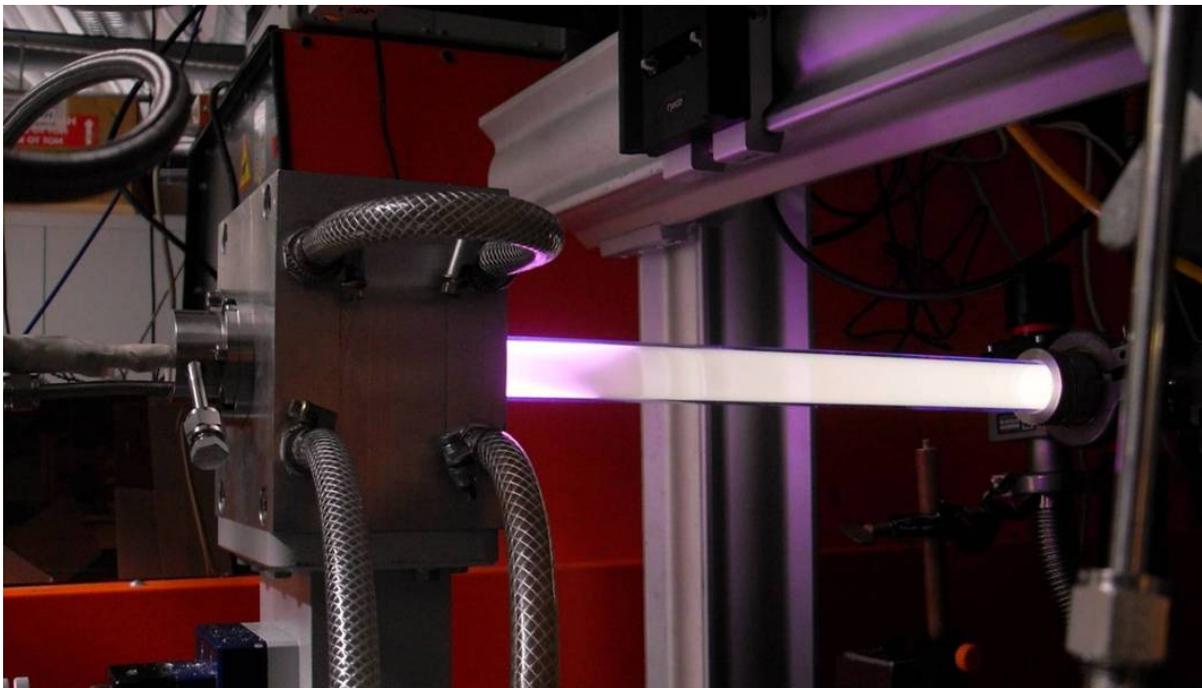


Abbildung 3.11: Plasmareaktor im Betrieb (ohne Heißwand-Ofen)

Abbildung 3.12 (links) zeigt den experimentell ermittelten, mittleren Partikeldurchmesser für unterschiedliche Präkursormassenanteile. Diese Untersuchung wurde ohne Heißwand-Ofen durchgeführt. Der Trägergasmassenstrom ist gleichbleibend $\dot{m}_{O_2} = 1.0 \text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar} = 2.1 \text{ l/min}$, der Reaktordruck beträgt konstant $p_{exit} = 4000 \text{ Pa}$. Die Interpretation der Ergebnisse ist schwierig, da gegenläufige Auswirkungen berücksichtigt werden müssen. Zum einen führt ein steigender Präkursormassenanteil zu einer Zunahme des Partikeldurchmessers, da mehr Monomere gebildet werden und somit auch mehr Stoßpartner zur Verfügung stehen. Zum anderen wird durch die erhöhte

Wärmefreisetzung aufgrund des Präkursorabbrands die Verweilzeit im Reaktor reduziert. Im Experiment nimmt der mittlere Partikeldurchmesser anfangs mit steigendem Präkursor Massenanteil zu und erreicht bei $\dot{m}_{TEOS} = 0.022 \cdot \dot{m}_{Ges}$ ein Maximum. Darüber hinaus führt eine weitere Steigerung des Präkursor Massenanteils zu einer Abnahme des Partikeldurchmessers. ABDALI *et al.* [3] vermuten, dass die Nukleationsrate stark zunimmt und somit mehr Primärpartikel mit geringerem Durchmesser gebildet werden. Dies soll in Kapitel 3.5.3 überprüft werden.

Als Nächstes wurde der Heißwand-Ofen angeschlossen und eine Variation der Wandtemperatur durchgeführt (Abb. 3.12 mittig). Der Trägergas Massenstrom ist auch hier gleichbleibend $\dot{m}_{O_2} = 1.0 \text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar} = 2.1 \text{ l/min}$. Der Präkursor Massenanteil beträgt $\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$ und der Reaktordruck ist weiterhin konstant $p_{exit} = 4000 \text{ Pa}$. Der ermittelte Partikeldurchmesser nimmt bis zu einer Wandtemperatur von $T_W = 673 \text{ K}$ zu und fällt dann stark ab. Auch hier treten disparate Effekte auf, da die Kollisionsfrequenz der Partikel durch eine höhere Wandtemperatur zunimmt und gleichzeitig die Verweilzeit reduziert wird.

Abschließend wurde der Einfluss des Reaktordrucks untersucht (Abb. 3.12 rechts). Trägergas Massenstrom und Präkursor Massenanteil entsprechen dem vorherigen Versuch, die Wandtemperatur wurde auf $T_W = 1073 \text{ K}$ eingestellt. Mit zunehmendem Reaktordruck erfolgt eine nahezu lineare Zunahme des Partikeldurchmessers. Dies ist nahe-

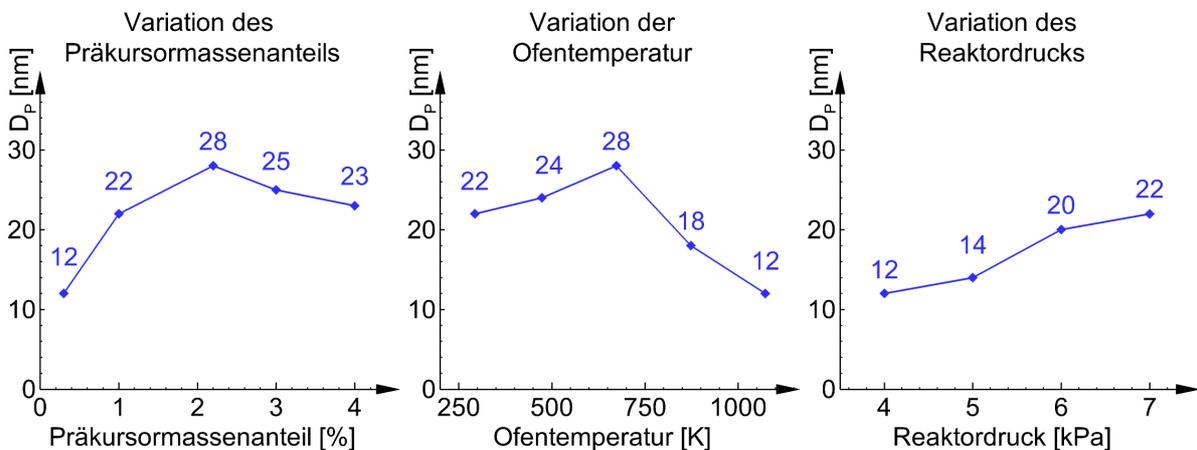


Abbildung 3.12: Variation der maßgebenden Parameter für das Partikelwachstum

Die Massenströme des Trägergases sind $\dot{m}_{O_2} = 1.0 \text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar} = 2.1 \text{ l/min}$.

Links: Variation des Präkursor Massenanteils zwischen $\dot{m}_{TEOS} = 0.003 - 0.04 \cdot \dot{m}_{Ges}$
 (Reaktordruck: $p_{exit} = 4000 \text{ Pa}$, ohne Heißwand-Ofen)

Mittig: Variation der Ofentemperatur zwischen $T_W = 293 - 1073 \text{ K}$
 (Präkursor Massenanteil: $\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$, Reaktordruck: $p_{exit} = 4000 \text{ Pa}$)

Rechts: Variation des Reaktordrucks zwischen $p_{exit} = 4000 - 8000 \text{ Pa}$
 (Präkursor Massenanteil: $\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$, Ofentemperatur: $T_W = 1073 \text{ K}$)

liegend, da bei konstantem Massenstrom die Verweilzeit linear mit dem Reaktordruck steigt.

An dieser Stelle muss angemerkt werden, dass nach derzeitigem Stand der Forschung sowohl für die Experimente ohne Heißwand-Ofen als auch für die Experimente mit geringer Ofentemperatur eigentlich stark aggregierte Partikel zu erwarten sind. ABDALI *et al.* [3] berichten jedoch, dass überwiegend sphärische und nicht aggregierte Partikel detektiert wurden. Mögliche Erklärungen werden in Zusammenhang mit den numerischen Ergebnissen diskutiert (Kapitel 3.5.4).

3.5.2 Berechnung des Partikelwachstums

Eine detaillierte Messung der Gas- und Wandtemperaturen war im Betrieb des Plasmareaktors nicht möglich. Einerseits ist die Gastemperatur in der Nähe des Plasmas für herkömmliche Sensoren zu hoch. Andererseits ist das Quarzrohr zu spröde um Wandtemperatursensoren anzubringen. Um dennoch möglichst präzise Randbedingungen für die Simulation zu generieren, wurde ein CAD-Modell des Plasmareaktors erstellt (siehe Abb. 3.13) und anschließend unter Berücksichtigung aller wichtigen Komponenten vernetzt. Der Rechenaufwand konnte erheblich reduziert werden, indem die Geometrie des Plasmareaktors rotationssymmetrisch approximiert wurde. Eine Abweichung gegenüber der Originalgeometrie tritt nur im Bereich der Antenne auf und ist für die Berechnung des Partikelwachstums unbedeutend.

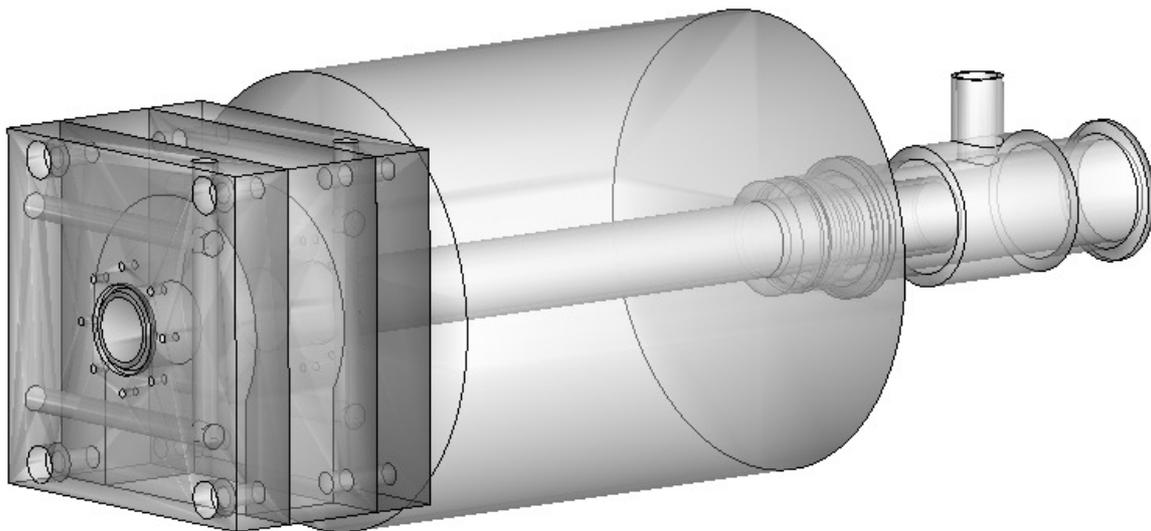


Abbildung 3.13: 3-D CAD-Skizze des Plasmareaktors

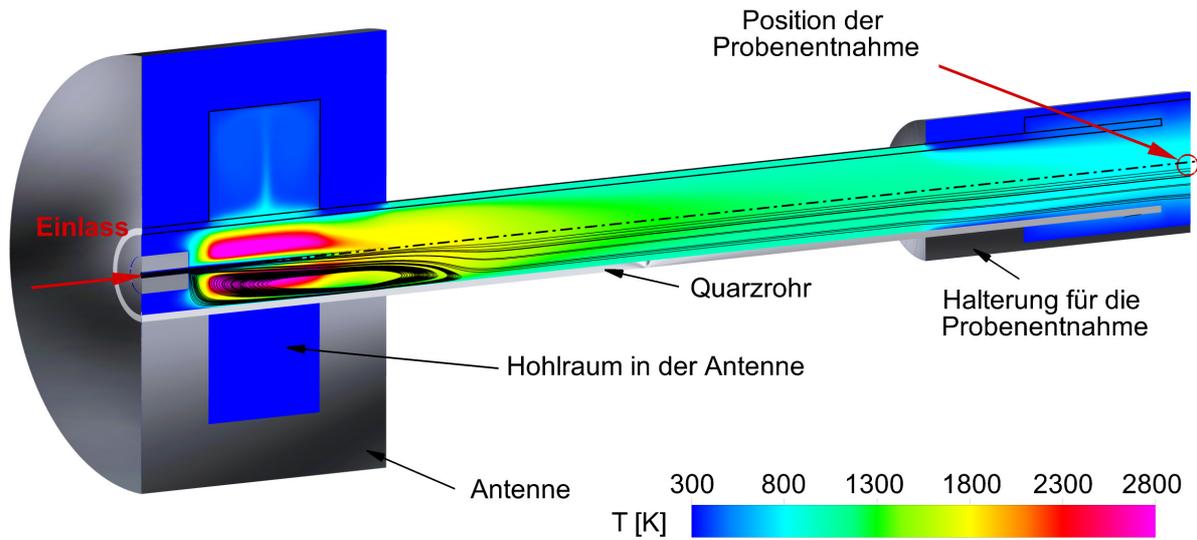


Abbildung 3.14: Berechnete Temperaturverteilung im Plasmareaktor

Dargestellt ist das Simulationsergebnis für einen Reaktordruck von $p_{exit}=4000 \text{ Pa}$ und einen Präkursormassenanteil von $\dot{m}_{TEOS}=0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$. Der Trägergasmassenstrom ist $\dot{m}_{O_2}=1.0 \text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar}=2.1 \text{ l/min}$, die Wandtemperatur des Heißwand-Ofens beträgt $T_W=1073 \text{ K}$.

Abbildung 3.14 zeigt einen Schnitt durch den Plasmareaktor (ohne Heißwand-Ofen). In der oberen Hälfte ist die lokale Temperaturverteilung dargestellt, die untere Hälfte zeigt die einzelnen Komponenten. Die Einlass- und Auslassrandbedingungen werden entsprechend den Angaben von ABDALI *et al.* [3] gewählt. Die Außenwandtemperatur der Antenne sowie der Halierung für die Probenentnahme beträgt gemäß separaten Messungen $T_W = 291 \text{ K}$ bzw. $T_W = 318 \text{ K}$. Die Außenwandtemperatur des Quarzrohres ist mit $T_W = 1073 \text{ K}$ an den Betriebspunkt des Heißwand-Ofens angepasst. Die Leistung der Mikrowelle wird vereinfacht als Quellterm in der Energieerhaltung eingekoppelt. Nicht berücksichtigt werden Strahlung, Dissoziation des Sauerstoffs und der Phasenwechsel zu Plasma. Wie man der Abb. 3.14 entnehmen kann, ist der injizierte Massenstrom anhand der niedrigen Temperatur deutlich zu erkennen. Oberhalb und unterhalb des Strahls bilden sich Rezirkulationsgebiete, die sich auf bis zu $T \approx 3000 \text{ K}$ aufheizen. Kurz nach der Antenne nimmt die Strömung aufgrund der geringen Dichte rasch die Temperatur des Heißwand-Ofens an. Der Aluminiumblock der Antenne und die Halierung für die Probenentnahme heizen sich wegen der hohen Wärmeleitfähigkeit nur geringfügig auf. Die simulierte Maximaltemperatur der Antenne beträgt $T = 321 \text{ K}$ und stimmt gut mit den Messungen überein. Abbildung 3.15 zeigt die lokale Machzahl (obere Hälfte) und die statische Temperatur (untere Hälfte) in unmittelbarer Nähe der Antenne. Aus

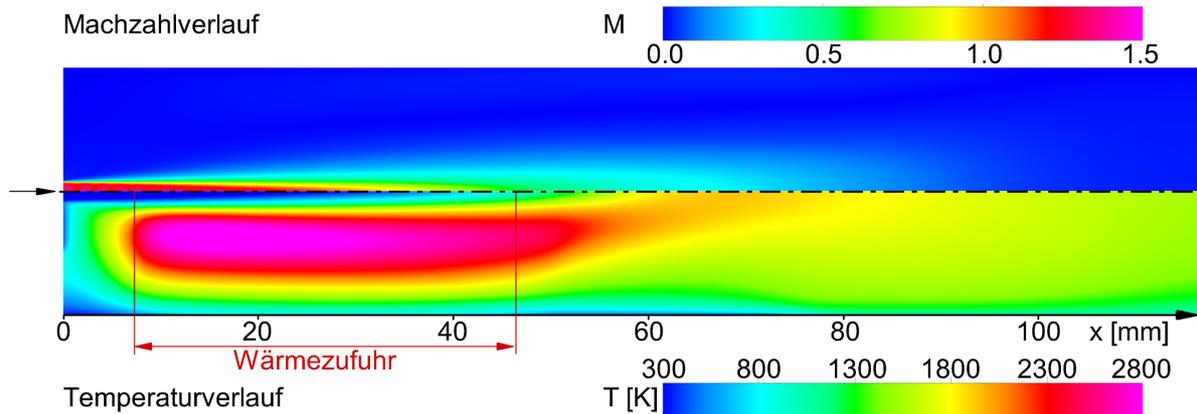


Abbildung 3.15: Machzahl- und Temperaturverteilung im Bereich der Mikrowellenantenne
 Dargestellt ist das Simulationsergebnis für einen Reaktordruck von $p_{exit}=4000 \text{ Pa}$ und einen Präkursormassenanteil von $\dot{m}_{TEOS}=0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$. Der Trägergasmassenstrom ist $\dot{m}_{O_2}=1.0 \text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar}=2.1 \text{ l/min}$, die Wandtemperatur des Heißwand-Ofens beträgt $T_W=1073 \text{ K}$.

dem Machzahlverlauf geht hervor, dass die von ABDALI *et al.* [3] vorgegebenen Massenströme bei geringem Reaktordruck ($p_{exit} < 7000 \text{ Pa}$) zu einer Expansion des Freistrahls in den Überschall führen. Damit einhergehend ist eine lokale Kondensation des Präkursors denkbar. Aufgrund der raschen Aufheizung durch die Mikrowellenstrahlung ist dies jedoch unerheblich.

Der Bereich der Wärmezufuhr in der Simulation ist durch rote Striche markiert. Der Quellterm ist in Form einer Kosinusfunktion mit einem Maximalwert auf der Kanalachse vorgegeben und beträgt im Integral $P = 200 \text{ W}$. Rechnungen mit alternativen Funktionen ergaben, dass das Profil der Wärmezufuhr aufgrund der ausgeprägten Rezirkulationsgebiete keinen signifikanten Einfluss auf den Partikeldurchmesser hat.

Weiterhin kann man Abb. 3.15 entnehmen, dass die höchsten Temperaturen, und somit die Bereiche mit dem höchsten Modellierungsfehler, vornehmlich in den Rezirkulationsgebieten auftreten und daher für das nachfolgende Partikelwachstum von untergeordneter Bedeutung sind.

Da der Wirkungsgrad der Antenne unbekannt ist, wird der Einfluss numerisch durch eine Variation der eingekoppelten Leistung analysiert. Experimentelle Untersuchungen ergaben, dass der Partikeldurchmesser über einen großen Bereich unabhängig von der Mikrowellenleistung ist. Erst bei sehr geringen Betriebspunkten ($P \lesssim 100 \text{ W}$) findet keine Zündung des Plasmas statt und der Partikeldurchmesser nimmt stark ab. Wie Abb. 3.16 entnommen werden kann, wird dieses Verhalten von der Numerik ebenso wiedergegeben. Ausschlaggebend ist, ob der Umsatz des Präkursors innerhalb der Antenne vollständig abgeschlossen wird. Ist dies nicht der Fall, so bleibt der restliche Präkursor

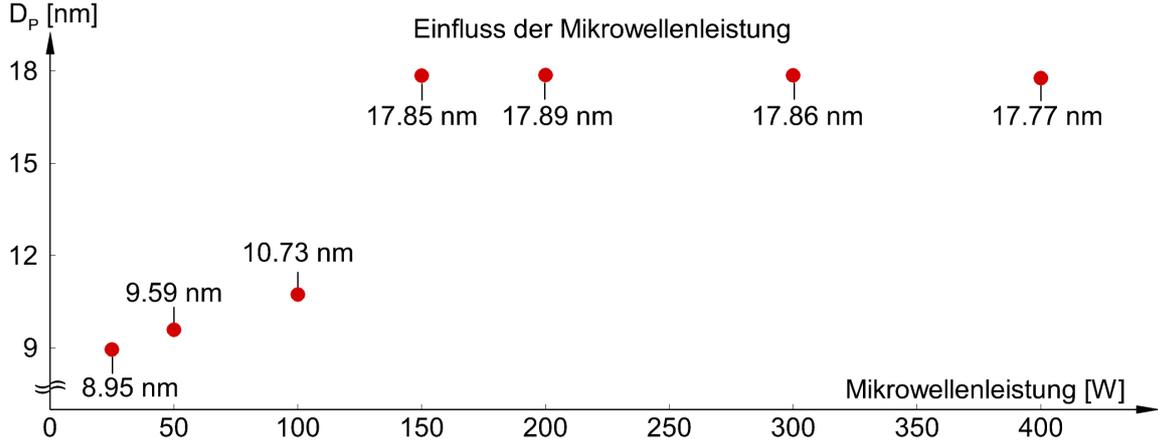


Abbildung 3.16: Einfluss der Mikrowellenleistung auf den Partikeldurchmesser
 Reaktordruck $p_{exit}=7000 Pa$, Reaktortemperatur $T_W=1073 K$, Präkursormassenanteil $\dot{m}_{TEOS}=0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$.

bis zum Austritt aus dem Rechengebiet erhalten.

Aus dieser Untersuchung geht hervor, dass eine genaue Kenntnis über den Wirkungsgrad der Antenne belanglos ist, da der Partikeldurchmesser für den gewählten Betriebspunkt sowohl im Experiment als auch in der Simulation unempfindlich gegenüber einer leichten Variation der Mikrowellenleistung ist. Dementsprechend wird in der Simulation der Einfachheit halber von einem Wirkungsgrad von $\eta = 100\%$ ausgegangen.

Da die Variation des Präkursormassenstroms ohne Heißwand-Ofen durchgeführt wurde, wird in der Simulation anstelle einer konstanten Wandtemperatur ein Polynom nach Gleichung 3.68 vorgegeben. Dabei handelt es sich um einen Fit an eine separat durchgeführte Messung der Temperatur an der Quarzrohr Außenwand.

$$T_W(x) = T_{ref} \cdot \sum_{i=0}^7 d_i \left(\frac{x}{l_{ref}} - 0.0952 \right)^i \quad (3.68)$$

Die Konstanten sind:

$$\begin{aligned} x &= \text{Abstand vom Einlass in [m]}, & l_{ref} &= 1 \text{ m} \\ T_{ref} &= 1 \text{ K}, \\ d_0 &= +4.632112 \cdot 10^2, & d_4 &= +2.061500 \cdot 10^7, \\ d_1 &= -3.755404 \cdot 10^2, & d_5 &= -1.277352 \cdot 10^8, \\ d_2 &= +3.865400 \cdot 10^4, & d_6 &= +3.787037 \cdot 10^8, \\ d_3 &= -1.548600 \cdot 10^6, & d_7 &= -4.338967 \cdot 10^8. \end{aligned}$$

Eine Gegenüberstellung des experimentell (blau) und numerisch (rot) ermittelten Partikeldurchmessers aller drei Parametervariationen ist in Abb. 3.17 dargestellt.

Im Vergleich zu in der Literatur verfügbaren Daten (z. B. [78]) kann im Falle der Variation des Präkursormassenanteils trotz der nur näherungsweise vorgegebenen Wandtemperatur eine sehr gute Übereinstimmung festgestellt werden. Der maximale Unterschied zwischen dem berechneten und gemessenen Durchmesser beträgt lediglich $\Delta D_P = 7 \text{ nm}$. Dennoch ist auffällig, dass die Simulation mit steigendem Präkursormassenanteil einen stetig steigenden Partikeldurchmesser vorhersagt, wohingegen im Experiment ein lokales Maximum bei einem Präkursormassenanteil von $\dot{m}_{TEOS} = 0.022 \cdot \dot{m}_{Ges}$ festgestellt wurde.

Auch das lokale Maximum bei der Variation der Ofentemperatur wird nicht abgebildet. In der Simulation scheint die Reduktion der Verweilzeit durch eine höhere Gastemperatur der dominierende Faktor für die zu erwartende Partikelgröße zu sein.

Abbildung 3.17 (rechts) zeigt, dass die Simulationsergebnisse bei einer hohen Reaktortemperatur ($T_W = 1073 \text{ K}$) und einem moderaten Präkursormassenanteil ($\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$) sehr gut mit den Experimenten übereinstimmen.

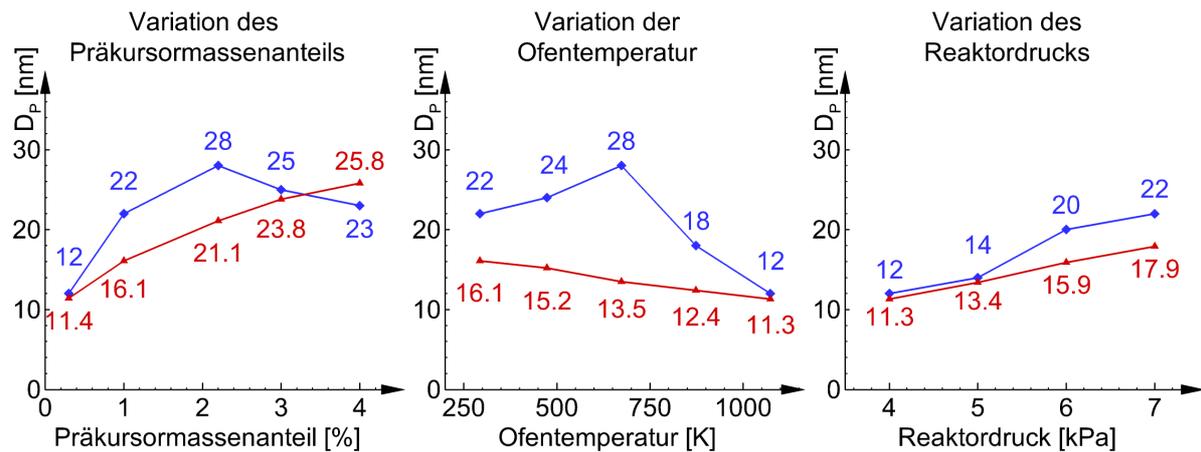


Abbildung 3.17: Vergleich des numerisch und experimentell ermittelten Partikeldurchmessers

Links: Variation des Präkursormassenanteils zwischen $\dot{m}_{TEOS} = 0.003 - 0.04 \cdot \dot{m}_{Ges}$

Mittig: Variation der Ofentemperatur zwischen $T_W = 293 - 1073 \text{ K}$

Rechts: Variation des Reaktordrucks zwischen $p_{exit} = 4000 - 8000 \text{ Pa}$

Die weiteren Versuchsbedingungen können Abbildung 3.12 entnommen werden.

Wie bereits erwähnt wurde, vermuten ABDALI *et al.* [3], dass eine erhöhte Nukleationsrate für die Abnahme des Partikeldurchmessers bei hohen Präkursormassenanteilen verantwortlich ist. Da dieser Prozess hier in keiner Rechnung berücksichtigt wurde, werden die Simulationen unter Verwendung des Nukleationsmodells aus Kapitel 3.4.2 wiederholt. Abschließend erfolgt in Kapitel 3.5.4 eine Interpretation der Ergebnisse.

3.5.3 Einfluss der Nukleation

Das bimodal-monodisperse Modell wurde ursprünglich zur Berechnung des Partikelwachstums im GiP-Reaktor implementiert. Aufgrund der hohen Übersättigung des SiO_2 -Dampfs wurde der Prozess der Nukleation vernachlässigt. Da im Plasmareaktor jedoch im Bereich der Mikrowellen-Antenne Temperaturen von bis zu $T \approx 3000\text{ K}$ berechnet werden, ist diese Annahme dort nicht gerechtfertigt. Im Folgenden soll daher das Partikelwachstum in unmittelbarer Nähe der Antenne unter Berücksichtigung der Nukleation betrachtet werden. Wie man der Modellbeschreibung in Kapitel 3.4.2 entnehmen kann, sind die zwei entscheidenden Faktoren zur Beschreibung der Nukleation zum einen der Grad der Übersättigung S (siehe Gleichung 3.23) und zum anderen die nötige Anzahl an Molekülen n^* für einen wachstumsfähigen Keim (siehe Gleichung 3.25). Ist die Übersättigung $S < 1$, so tritt keine Nukleation auf und die Monomere bleiben erhalten. In übersättigten Bereichen hingegen tritt Nukleation nur dann auf, wenn die kritische Clustergröße mindestens zwei Monomere beinhaltet ($n^* = 2$). Bei kleineren kritischen Clustern kann das Partikelwachstum wie zuvor durch das bimodal-monodisperse Modell ohne Nukleation beschrieben werden. In Abb. 3.18 ist die Nukleationsrate J dargestellt. Weiterhin sind die Isolinien für $S = 1$ (magenta) und $n^* = 2$ (schwarz) dargestellt.

Der Präkursor tritt links in den Reaktor ein und verbrennt nahezu instantan. Da die Monomeranzahlkonzentration folglich lokal sehr hoch ist und die statische Temperatur noch in einem Bereich von $T = 1200 - 1600\text{ K}$ liegt (siehe Abb. 3.15), ist der SiO_2 -Dampf so stark übersättigt, dass jedes Monomer einen wachstumsfähigen Keim darstellt ($S > 1$, $n^* < 2$) und keine Nukleation auftritt.

Stromab entlang der Achse nimmt die Anzahl der Monomere durch Koagulation stark

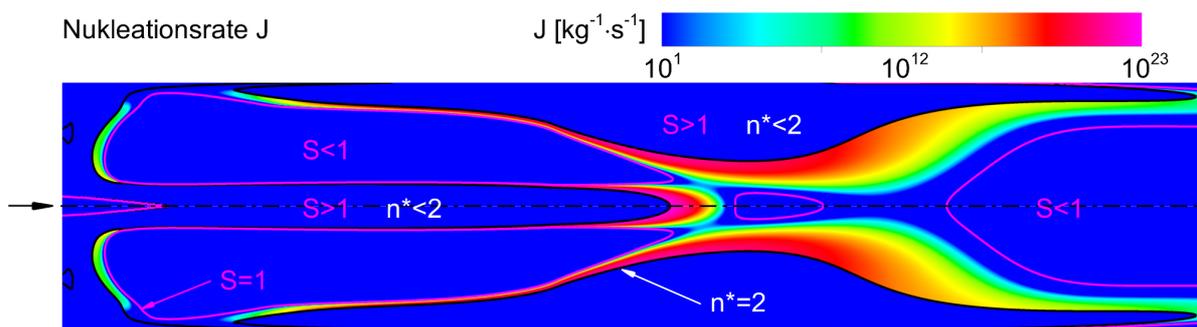


Abbildung 3.18: Nukleationsrate J im Plasmareaktor

Dargestellt ist das Simulationsergebnis für einen Reaktordruck von $p_{exit} = 4000\text{ Pa}$ und einen Präkursoranteile von $\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$. Der Trägergasstrom ist $\dot{m}_{O_2} = 1.0\text{ l/min}$ und $\dot{m}_{Ar} = 2.1\text{ l/min}$, die Wandtemperatur des Heißwand-Ofens beträgt $T_W = 1073\text{ K}$.

ab und die statische Temperatur steigt aufgrund der Wärmezufuhr. Die Übersättigung sinkt so weit, dass die Größe eines kritischen Clusters über $n^* = 2$ steigt und Nukleation berücksichtigt werden muss.

Im hinteren Bereich ist die Anzahlkonzentration der Monomere so gering ($n_{SiO_2} < 10^5 \text{ kg}^{-1}$), dass die Sättigung rechnerisch unter $S = 1$ fällt und die restlichen Monomere als Dampf erhalten bleiben. Ursache dafür ist zum einen die mangelnde Rechengenauigkeit. Zum anderen darf in diesem Bereich die Gültigkeit der empirisch ermittelten Gleichung für den Sättigungsdampfdruck (3.22) infrage gestellt werden. Für den endgültigen Partikeldurchmesser ist dies aber ohne Belang.

In den Zonen über- und unterhalb des eintretenden Freistrahls ist die statische Temperatur so hoch, dass die Sättigung $S < 1$ ist. Über $T \approx 2500 \text{ K}$ muss im Grunde sogar mit Partikelverdampfung gerechnet werden. Dies betrifft jedoch in erster Linie das Rezirkulationsgebiet. Der Freistrahls bleibt nahezu unbeeinflusst.

Etwa ab der Hälfte des gezeigten Ausschnitts tritt in der Nähe der Rohrwand ein Bereich auf, in dem die Übersättigung derart ansteigt, dass keine Nukleation stattfindet. Dies ist auf die Kühlung des Quarzrohres durch den Metallblock der Antenne zurückzuführen (siehe auch Abb. 3.15).

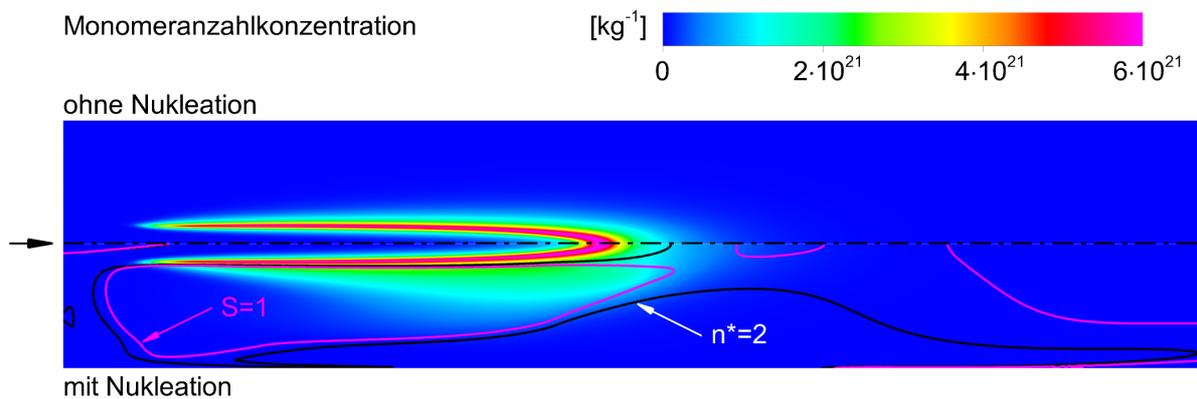


Abbildung 3.19: Monomeranzahlkonzentration im Plasmareaktor

Die Randbedingungen dieser Simulation sind in Abbildung 3.18 angegeben.

Ein Vergleich der Monomeranzahlkonzentration zwischen dem bimodal-monodispersen Modell mit und ohne Nukleation (Abb. 3.19) zeigt deutlich, dass die Anzahl der Monomere unter Berücksichtigung des Nukleationsprozesses in der heißen Zone des Plasmareaktors deutlich höher ist. In der Nähe der Achse ist jedoch kein Unterschied zu erkennen. Die meisten Monomere sind bereits durch Koagulation in die Partikelklasse übergegangen, bevor Nukleation eintritt. Dies wird auch durch einen Vergleich der Partikelanzahlkonzentration beider Modelle (Abb. 3.20) bestätigt.

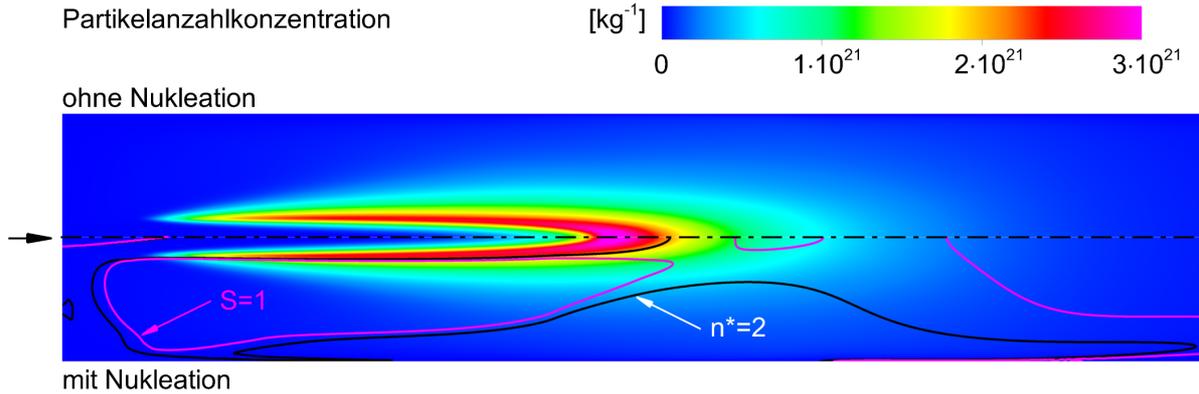


Abbildung 3.20: Partikelanzahlkonzentration im Plasmareaktor
Die Randbedingungen dieser Simulation sind in Abbildung 3.18 angegeben.

Auch der lokale Partikeldurchmesser stimmt in beiden Modellen sehr gut überein (Abb. 3.21). Dieser ist in der Nähe des Freistrahls in der Größenordnung von $D_P \lesssim 1 \text{ nm}$ und nimmt stromab rasch zu. An den Wänden steigt der Partikeldurchmesser aufgrund der höheren Verweildauer in der Grenzschicht. Da hier Rezirkulationsgebiete vorliegen, werden große Partikel stromauf getragen und erreichen direkt über- und unterhalb des Einlasses Durchmesser von $D_P > 10 \text{ nm}$. Diese mischen sich dann mit dem Freistrah, wodurch der mittlere Durchmesser im Moment der Zündung des Präkursors wieder abnimmt.

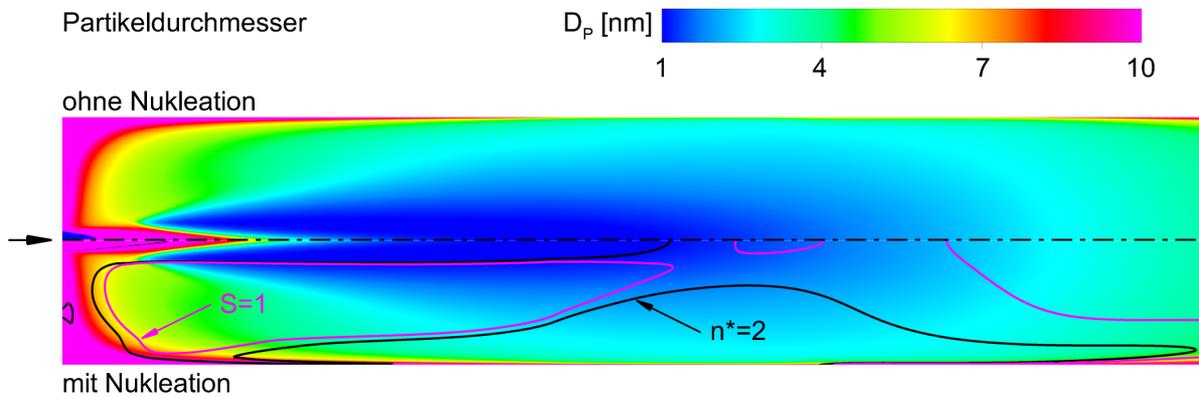


Abbildung 3.21: Partikeldurchmesser im Plasmareaktor
Die Randbedingungen dieser Simulation sind in Abbildung 3.18 angegeben.

Der größte Teil des eingespeisten Massenstroms bleibt von den Rezirkulationsgebieten und somit auch von den heißen Zonen unbeeinflusst. Das tatsächliche Partikelwachstum findet in der Simulation im Bereich des Heißwand-Ofens statt. Dort spielt Nukleation keine Rolle, weshalb an der Probenentnahmestelle auch kein Unterschied im Partikel-

durchmesser festgestellt werden kann. Abbildung 3.22 zeigt den experimentell ermittelten Partikeldurchmesser (blau) und die berechneten Durchmesser mit Nukleationsmodell (grün) und ohne Nukleationsmodell (rot). Da die Werte nahezu exakt aufeinander liegen, ist ein Einfluss der Nukleation unter den getroffenen Annahmen auszuschließen.

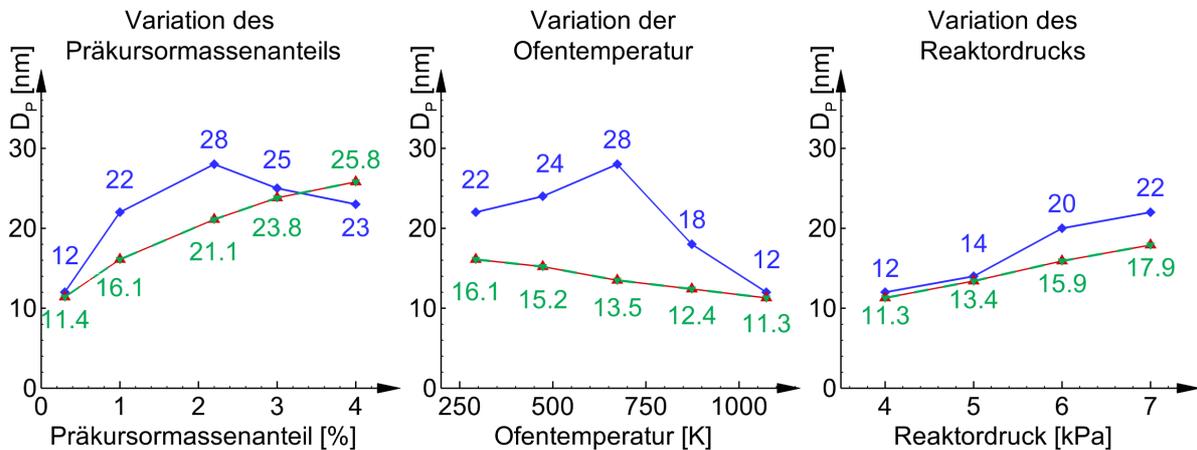


Abbildung 3.22: Einfluss der Nukleation auf den berechneten Partikeldurchmesser
 Experiment (blau), Simulation ohne Nukleation (rot) und mit Nukleation (grün)
 Links: Variation des Präkursormassenanteils zwischen $\dot{m}_{TEOS}=0.003 - 0.04 \cdot \dot{m}_{Ges}$
 Mittig: Variation der Ofentemperatur zwischen $T_W=293 - 1073 K$
 Rechts: Variation des Reaktordrucks zwischen $p_{exit}=4000 - 8000 Pa$
 Die weiteren Versuchsbedingungen können Abbildung 3.12 entnommen werden.

3.5.4 Bewertung der Ergebnisse

Trotz des verhältnismäßig einfachen bimodal-monodispersen Partikelmodells stimmen die experimentell ermittelten und die berechneten Partikeldurchmesser größtenteils sehr gut überein. Dennoch ist es nicht gelungen, die lokalen Maxima für die Variation des Präkursormassenanteils und der Ofentemperatur zu reproduzieren. In Anbetracht dieser Untersuchungen kann jedoch Nukleation als Ursache ausgeschlossen werden.

Aus dem gezeigten Rechnungs-Messungs-Vergleich lassen sich folgende Schlussfolgerungen ableiten:

1. Variation des Reaktordrucks

Für die Variation des Reaktordrucks wurde der Heißwand-Ofen mit einer Temperatur von $T_W = 1073 K$ betrieben. Bei diesen Temperaturen laufen die in diesem Modell vernachlässigten Sinterprozesse sehr schnell ab und spielen daher eine untergeordnete Rolle. Die Modellierung der Präkursorkinetik via passiver Skalare ist für den moderaten Präkursormassenanteil von $\dot{m}_{TEOS} = 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$ akzeptabel.

Daher erzielen die Modelle für diese Parametervariation die besten Ergebnisse. Hinsichtlich dieser Ergebnisse sind die Betriebsbedingungen des GiP-Reaktor mit Temperaturen zwischen $T = 1200 - 1500 \text{ K}$ und Präkursormassenanteilen von $\dot{m}_{TEOS} = 0.0025 - 0.01 \cdot \dot{m}_{Ges}$ vorteilhaft für die Berechnung des Partikelwachstums.

2. Variation der Ofentemperatur

Mit abnehmender Temperatur laufen Sinterprozesse langsamer ab und die charakteristische Koaleszenzzeit τ_{Kool} steigt exponentiell. Die charakteristische Koagulationszeit τ_{Koaag} hingegen bleibt nahezu unbeeinflusst und ist primär vom Partikeldurchmesser und der Partikelanzahlkonzentration abhängig. Ein Absenken der Reaktortemperatur kann folglich dazu führen, dass lokal aggregierte Partikel entstehen. Diese weisen in Abhängigkeit ihrer fraktalen Dimension einen sehr viel höheren Stoßquerschnitt auf, wodurch die Koagulation begünstigt wird und größere Partikel entstehen. Konsequenterweise nimmt dadurch die Partikelanzahlkonzentration stark ab und reduziert die Koagulationszeit gegenüber der Koaleszenzzeit wieder, wodurch tendenziell rundere Partikel entstehen. Durch die Implementierung eines Sintermodells könnte dies überprüft und Tendenzaussagen getroffen werden. Eine akkurate Berechnung des Partikeldurchmessers scheint bei derart geringen Temperaturen jedoch nicht möglich, da weder Sintermechanismen vollständig geklärt sind, noch benötigte Stoffwerte nanoskaliger Partikel für die Modellbildung zur Verfügung stehen.

3. Variation des Präkursormassenanteils

Die Variation des Präkursormassenanteils wurde ohne Heißwand-Ofen, und daher bei sehr kalten Reaktortemperaturen durchgeführt. Aus oben genannten Gründen ist daher eine Berechnung des Partikeldurchmessers ohne Sintermodell nicht sinnvoll. Dennoch könnte eine verbesserte Modellierung der Präkursorkinetik klären, ob möglicherweise die reduzierte Verweildauer aufgrund der nicht-äquimolaren Umsetzung des Präkursors für die Abnahme des Partikeldurchmessers bei hohen Massenanteilen verantwortlich ist.

Weitere offene Fragen betreffen in erster Linie den Einfluss des Plasmas. Ungeklärt ist, wie sich der Phasenwechsel auf die Strömung auswirkt. Weiterhin können durch die Ionisation des Trägergases negativ geladene Partikel entstehen und so der Koagulationsprozess unterdrückt werden. Auch die Berücksichtigung der Partikelverdampfung könnte zu einem besseren Verständnis der Partikelkinetik in unmittelbarer Nähe der Mikrowellenantenne beitragen. Zur Untersuchung höherer Präkursormassenströme sollte künftig eine Anpassung der Volumenströme und der Stoffwerte in Betracht gezogen werden.

3.6 Simulation des Partikelwachstums im GiP-Reaktor

Die Planung des GiP-Prozesses und der Bau einer ersten Versuchsanlage erfolgte innerhalb der ersten zwei Förderjahre. In den folgenden vier Jahren wurde die Anlage stetig weiterentwickelt. Dies geschah vorwiegend aus zwei Gründen:

- Neben dem vorrangigen Ziel der Partikelproduktion sollte an der Pilotanlage auch die Untersuchung zahlreicher Detailphänomene realisiert werden. Dazu zählen beispielsweise das Makro- und Mikromischen des Präkursors, der Präkursorabbrand, eine In-Situ-Messung des Partikelwachstum oder die Wasserinjektion in eine heiße Überschallströmung (Quenche). Aufgrund der Betriebsbedingungen im Reaktor erwiesen sich manche der daraus resultierenden Anforderungen, wie etwa ein optischer Zugang zur Reaktionszone, als technisch schwierig bzw. nicht realisierbar. Daher war eine stetige Weiterentwicklung und Anpassung der Einzelkomponenten nötig.
- Untersuchungen des TP3 zur Präkursorkinetik deuteten darauf hin, dass die ursprünglich angestrebte Betriebstemperatur von $T_{01} = 1200 \text{ K}$ nicht ausreicht, um einen vollständigen Abbrand des Präkursors innerhalb des Reaktors zu ermöglichen. Zusätzlich zeigten erste Experimente, dass deutlich höhere Wärmeverluste über die Reaktorwände auftraten als zunächst angenommen. Um dem entgegenzuwirken und eine vollständige Umsetzung des Präkursors zu ermöglichen wurde schrittweise die Betriebstemperatur des Brenners erhöht, die einzelnen Komponenten mit Keramik ausgekleidet und die Gesamtlänge des Reaktors angepasst.

Im dauerhaften Betrieb der Anlage stellte sich heraus, dass die hohe Reaktortemperatur zu einem abrasiven Verschleiß der ersten Düse und folglich zu einer erhöhten Wandrauigkeit mit signifikantem Einfluss auf die Strömungszustände und die Wärmeverluste führte. Weiterhin setzte sich die zweite Düse aufgrund von Partikelablagerungen während des Betriebs langsam zu, was eine stromauf Verschiebung des Pseudo-Stoßsystems zur Folge hatte. Um dennoch eine Regelung der Stoßposition im Betrieb zu ermöglichen, wurde vor dem zweiten engsten Querschnitt eine Sekundärlufteinspeisung vorgesehen, die mit zunehmender Partikelablagerung reduziert wurde.

In der folgenden Prozessbeschreibung (Kapitel 3.6.1) werden die Simulationsergebnisse zu den Schlüsselfunktionen der gegenwärtigen Anlage dargestellt. Die Validierung der Partikelmodelle (Kapitel 3.6.2) wird anhand einer früheren Variante durchgeführt, zu dem eine höhere Datenbasis an Messergebnissen vorliegt.

3.6.1 Prozessbeschreibung

Eine der drei Schlüsselfunktionen des GiP-Prozesses ist die stoßinduzierte Verbrennung. In der neusten Variante der ersten Düse wurde einerseits eine Keramikverkleidung vorgesehen, um die Wärmeverluste zu reduzieren. Andererseits wurden die numerischen Untersuchungen zur passiven Stoßbeeinflussung in der neuen Konturführung berücksichtigt, um so eine raschere Aufheizung zu ermöglichen. Abbildung 3.23 (oben) zeigt den Machzahlverlauf auf der Symmetrieachse im Bereich des Pseudo-Stoßsystems. Im Gegensatz zu den in Kapitel 2.5.2 gezeigten Ergebnissen wurde hier der Ruhedruck am Einlass

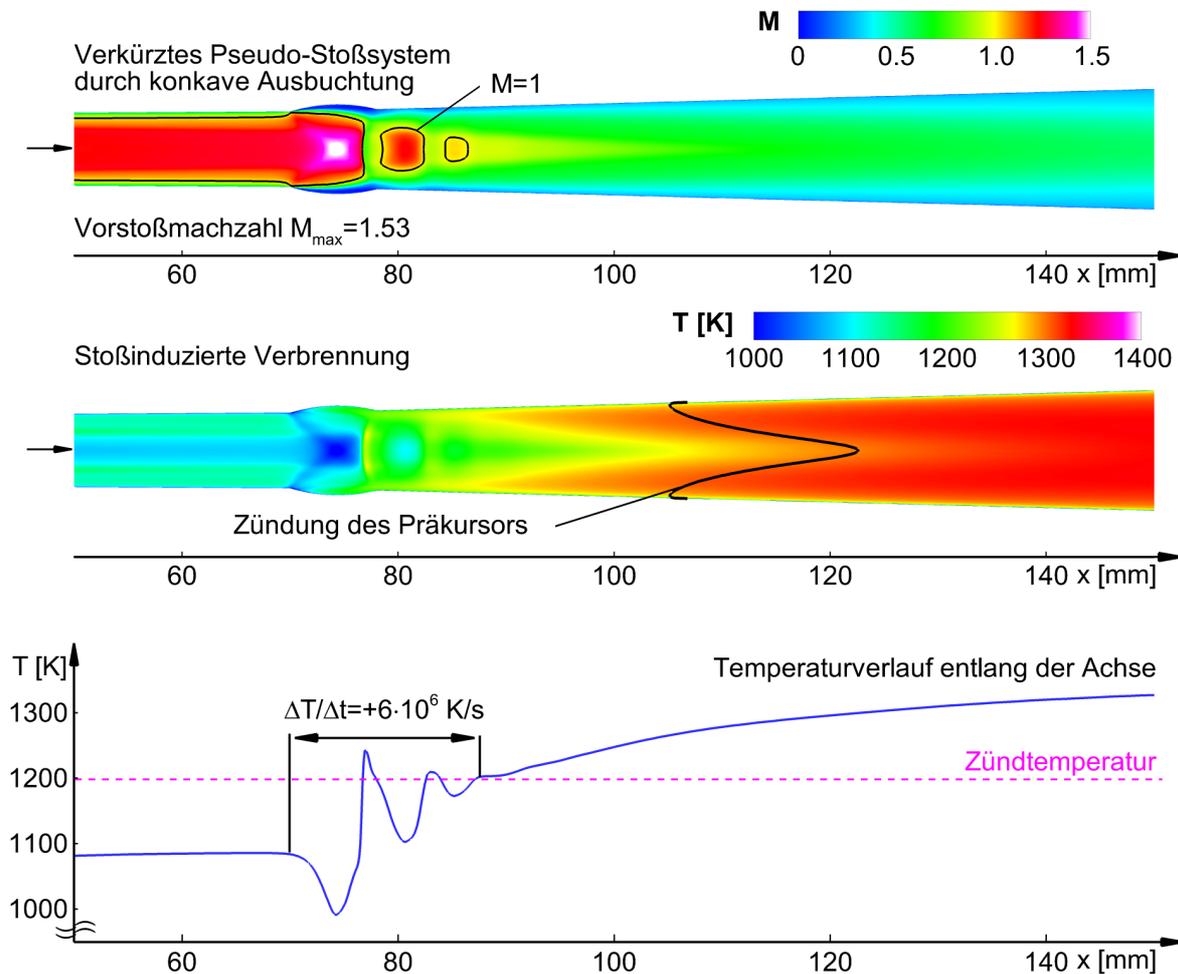


Abbildung 3.23: Schlüsselfunktion 1: Stationäre stoßinduzierte Verbrennung

Die Konturplots zeigen die Machzahlverteilung (oben) und die Temperaturverteilung (mittig) auf der Symmetrieebene im Bereich des Stoßsystems. Darunter ist der Verlauf der statischen Temperatur entlang der Kanalachse dargestellt. Die Einlassrandbedingungen sind $p_{01} = 6.5$ bar und $T_{01} = 1500$ K, die Sandraugigkeit der Kanalwand beträgt $k_s = 2 \cdot 10^{-5}$ m und der Präkursorstrom ist $\dot{m}_{TEOS} = 0.0025 \cdot \dot{m}_{Ges}$.

auf $p_{01} = 6.5 \text{ bar}$ und der Präkursor Massenstrom auf $\dot{m}_{TEOS} = 0.0025 \cdot \dot{m}_{Ges}$ reduziert. Weiterhin wurde eine Wandrauigkeit ($k_s = 2 \cdot 10^{-5} \text{ m}$) berücksichtigt. Die daher höhere Grenzschichtdicke hat eine geringere Machzahl im Überschallbereich aber auch eine erhöhte Durchmischung des Präkursors zur Folge. Die Länge des Pseudo-Stoßsystems bleibt gegenüber der Auslegung mit hydraulisch glatten Wänden unbeeinflusst, wohingegen sich die Form des Shocktrains leicht ändert. Mittig in Abb. 3.23 ist die statische Temperatur dargestellt. Der kältere Präkursor Massenstrom ist im Überschallbereich trotz besserer Durchmischung deutlich zu erkennen. Wie jedoch der Verlauf der statischen Temperatur entlang der Kanalachse (unten) zeigt, liegt diese bereits bei $T \approx 1100 \text{ K}$. Die von TP3 angegebene Zündtemperatur von $T = 1200 \text{ K}$ wird noch innerhalb des Pseudo-Stoßsystems erreicht und die Zündverzugszeit ist bereits wenige Millimeter nach dem Pseudo-Stoßsystem abgelaufen (mittig: schwarze Linie $\hat{=} \Theta = 1$).

Abbildung 3.24 (oben) zeigt den Machzahlverlauf im gesamten Reaktor. Darunter ist auch hier der Verlauf der statischen Temperatur entlang der Achse (rot) aufgetragen. Kurz nach der Zündung erreicht die Strömung aufgrund der Verbrennung des Präkursors eine Maximaltemperatur von $T_{max} = 1325 \text{ K}$. Anschließend fällt diese trotz Keramiksolierung durch den Wandwärmeübergang leicht ab. Die Temperaturhistorie (blau) verdeutlicht, dass die statische Temperatur von Beginn der Reaktion bis zum Erreichen

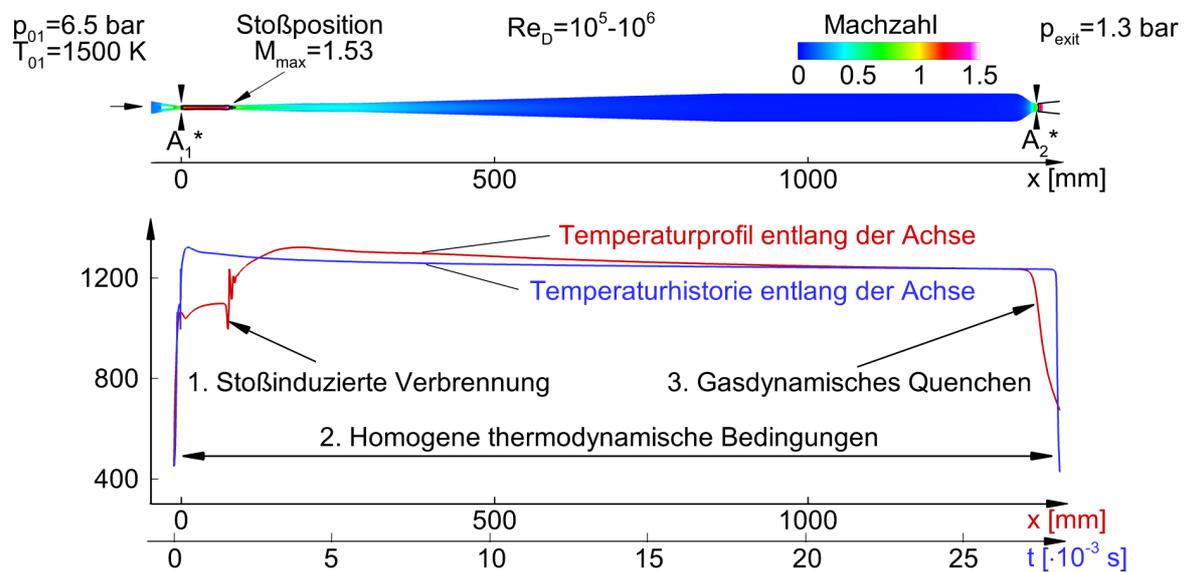


Abbildung 3.24: Schlüsselfunktion 2: Homogene thermodynamische Zustände im gesamten Reaktor
 Oben: Machzahlverlauf auf der vertikalen Symmetrieebene
 Unten: Temperaturprofil (rot) und Temperaturhistorie (blau) entlang der Achse
 Der Gegendruck nach der zweiten Düse beträgt $p_{exit} = 1.3 \text{ bar}$, die Einlassrandbedingungen sind in Abbildung 3.23 angegeben.

der zweiten Düse nahezu konstant ist. Dort fällt die statische Temperatur durch die Beschleunigung der Strömung nahezu instantan ab.

Die Strömungsführung der rotationssymmetrischen zweiten Düse wurde von TP2 dahin gehend optimiert, dass die Kühlrate des aerodynamischen Quenchens um den Faktor 20 verbessert wurde und nun $\Delta T/\Delta t \approx -10^7 \text{ K/s}$ beträgt. Der zweite engste Querschnitt selbst ($x = -15 \text{ mm}$ bis $x = 45 \text{ mm}$) ist auswechselbar und kann an einen höheren bzw. geringeren Massenstrom ($\pm 10 \%$) angepasst werden. Die Konturführung wurde so ausgelegt, dass durch eine Verschiebung der Lanze ein ähnlicher Machzahl- und Temperaturverlauf bis zur Wassereinjektion vorliegt. Der Machzahlverlauf für die Basisauslegung (Massenstrom $\dot{m} = 0.1 \text{ kg/s}$) ist in Abb. 3.25 (oben) dargestellt. Das Diagramm darunter zeigt Verlauf der statischen Temperatur entlang der oben eingezeichneten Stromlinie. Die Wassereinjektion wurde in dieser Simulation nicht berücksichtigt, da seitens des TP2 nur eine Basis-Auslegung des aerodynamischen Quenchens durchgeführt wurde. Eine ausführliche Beschreibung experimenteller und numerischer Ergebnisse zum Quenchen mit Wassereinspeisung, Strahlaufbruch und Verdampfung sind in der Arbeit von RAKEL [112] enthalten.

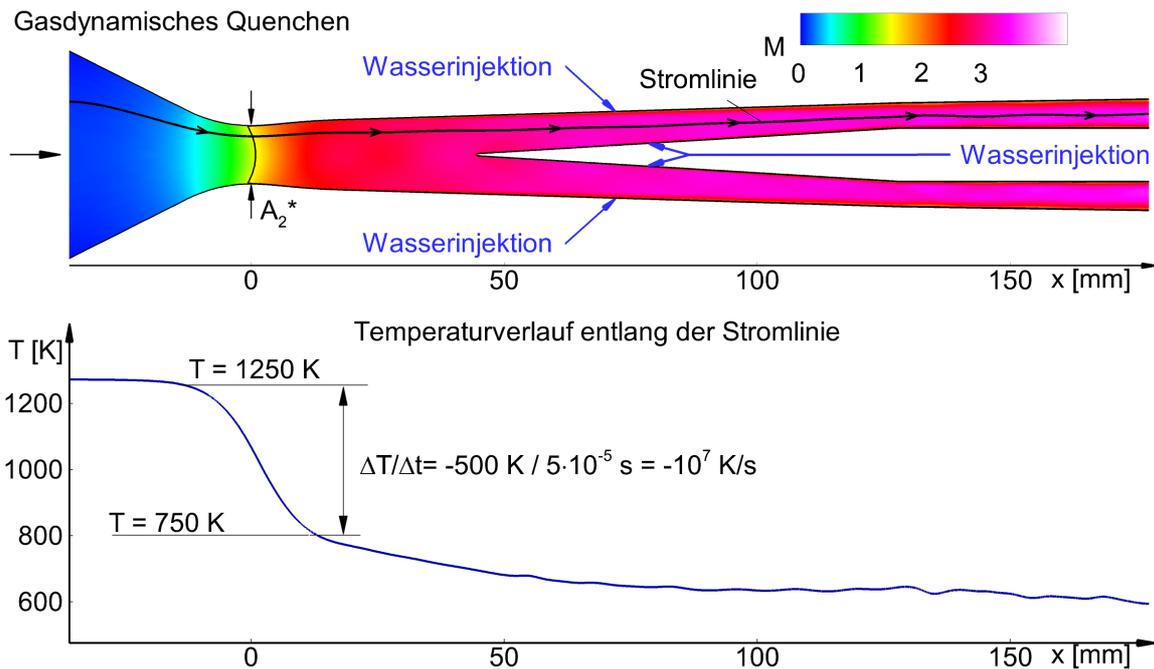


Abbildung 3.25: Schlüsselfunktion 3: Gasdynamisches Quenchen

Oben: Machzahlverlauf auf der vertikalen Symmetrieebene

Unten: Temperaturverlauf entlang der oben eingezeichneten Stromlinie

Die Einlassrandbedingungen sind $p_{02} = 5.2 \text{ bar}$ und $T_{02} = 1273.15 \text{ K}$, der Gegen-
druck beträgt $p_{exit} = 1.3 \text{ bar}$. Die Wassereinjektion wurde in der Simulation nicht
berücksichtigt.

3.6.2 Rechnungs-Messungs-Vergleich

Für den Rechnungs-Messungs-Vergleich wird ein Versuchstag gewählt, an dem die Anlage mit einer neuen keramikbeschichteten Primärdüse (ohne Konturmodifikation) betrieben wurde. Der Diffusor sowie einzelne Elemente des Reaktorteils hingegen bestanden aus Metallseitenwänden. Getestet wurde der Präkursor TEOS. Partikelproben im Reaktor und nach der Quenche zeigten überwiegend sphärische Partikel mit enger Größenverteilung.

Druck- und Temperaturverlauf

Abbildung 3.26 (oben) zeigt den Machzahlverlauf auf der Symmetrieebene des GiP-Reaktors. Die Stoßposition ist bei $x = 200 \text{ mm}$, die Vorstoßmachzahl beträgt $M = 1.8$ und das Pseudo-Stoßsystem (siehe Bildausschnitt) erstreckt sich über $\Delta x \approx 60 \text{ mm}$. In

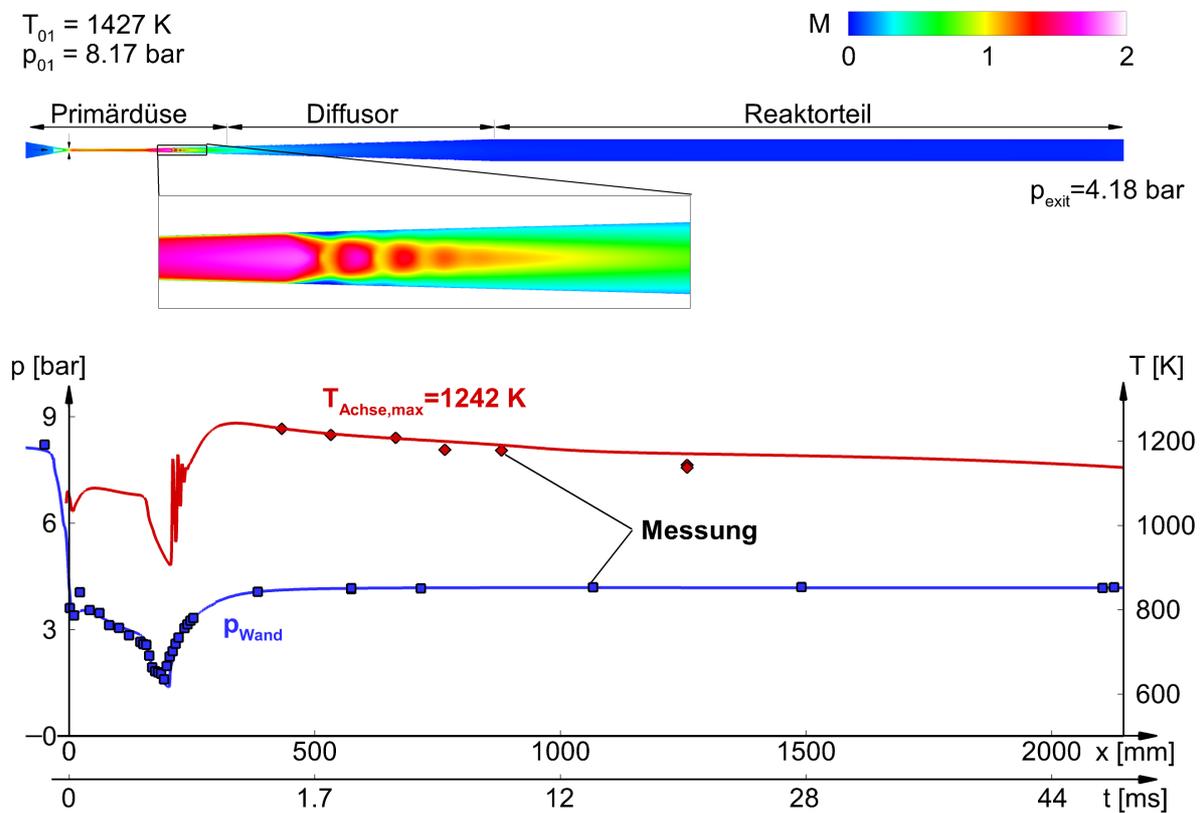


Abbildung 3.26: Rechnungs-Messungs-Vergleich der Gastemperatur und des Wanddruckverlaufs
 Oben: Machzahlverlauf auf der Symmetrieebene
 Unten: Gegenüberstellung der gemessenen und simulierten statischen Temperatur (rot) und des gemessenen und simulierten Wanddruckverlaufs (blau)
 Die Einlassrandbedingungen sind $p_{01} = 8.17 \text{ bar}$ und $T_{01} = 1427 \text{ K}$, der Gegendruck ist $p_{\text{exit}} = 4.18 \text{ bar}$, die Sandrauigkeit der Kanalwand ist $k_s = 2 \cdot 10^{-5} \text{ m}$ und der Präkursormassenstrom beträgt $\dot{m}_{\text{TEOS}} = 0.0025 \cdot \dot{m}_{\text{Ges}}$.

dem darunterliegenden Diagramm ist ein Rechnungs-Messungs-Vergleich für den Verlauf der statischen Temperatur (rot) und des Wanddrucks (blau) dargestellt. In beiden Fällen zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit den gemessenen Daten.

Berechneter Partikeldurchmesser mit dem bimodal-monodispersen Modell

Die beste Partikelqualität konnte am Beginn des Versuchstags festgestellt werden. Mit zunehmender Versuchsdauer zeigten die TEM-Bilder der Messungen im Reaktionsraum eine veränderte Partikelstruktur¹. Aus diesem Grund werden für die Validierung der Partikelmodelle zwei Messungen kurz nach dem Anfahren der Anlage herangezogen. Die Einlass- und Auslassrandbedingungen sind für beide Zeitpunkte nahezu konstant, wohingegen die Temperatur der Metallseitenwände des Diffusors aufgrund des nicht abgeschlossenen Aufheizvorgangs zwischen dem ersten und dem zweiten Messpunkt leicht zunimmt. Wie aus Abb. 3.27 (unten) hervorgeht, führt dies sowohl in der Simulation als auch im Experiment zu einer Zunahme des mittleren Partikeldurchmessers. Zum ersten Zeitpunkt (blau) beträgt der berechnete und der gemessene Partikeldurchmesser $D_{P,Sim.} = 21 \text{ nm}$ bzw. $D_{P,Exp.} = 22 \text{ nm}$. Durch die Zunahme der Wandtemperatur im Diffusor ($\Delta T = 20 - 50 \text{ K}$) sinken die Wärmeverluste. Die statische Temperatur der Strömung hingegen nimmt nur leicht zu. Da diese jedoch exponentiell in die Abbrandgeschwindigkeit eingeht, erfolgt die Umsetzung des Präkursors schneller und der mittlere Partikeldurchmesser nimmt deutlich zu ($D_{P,Sim.} = 26 \text{ nm}$ und $D_{P,Exp.} = 25 \text{ nm}$).

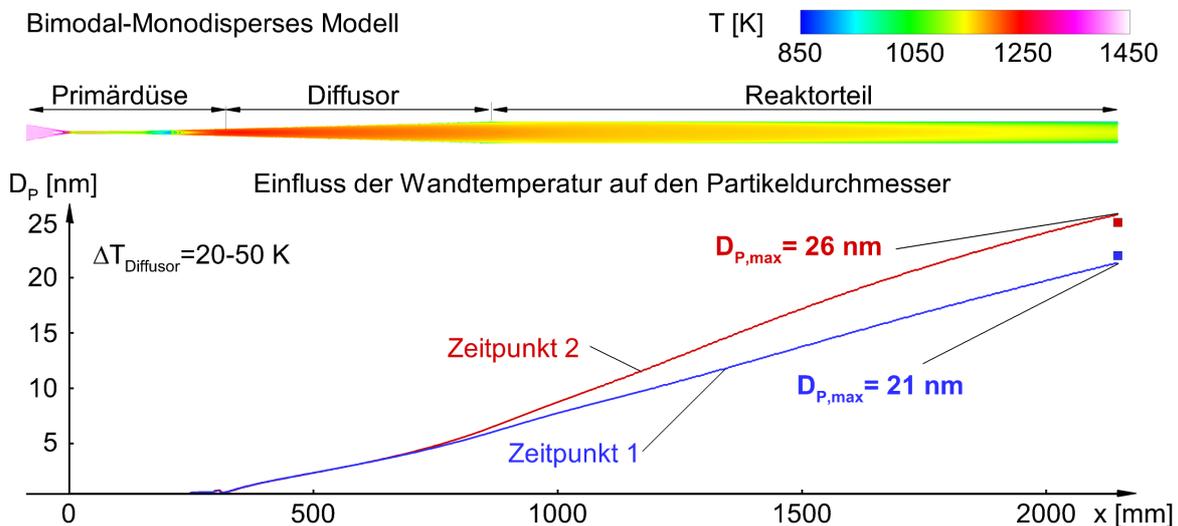


Abbildung 3.27: Validierung des bimodal-monodispersen Partikelmodells für zwei Betriebspunkte
 Oben: Temperaturverlauf auf der Symmetrieebene
 Unten: Berechneter Partikeldurchmesser entlang der Achse für zwei Betriebspunkte

¹ Im Verdacht steht, dass sich die Sonde im Reaktionsraum ähnlich wie der zweite engste Querschnitt langsam zugesetzt und die Messung verfälscht hat [49].

Berechneter Partikeldurchmesser mit dem bimodal-polydispersen Modell

Um eine Aussage über die Standardabweichung des Partikeldurchmessers treffen zu können, wurden dieselben Betriebspunkte mit dem bimodal-polydispersen Modell berechnet. Abbildung 3.28 (oben) zeigt exemplarisch für den Zeitpunkt 2 den lokalen Partikeldurchmesser und die geometrische Standardabweichung auf der Symmetrieebene des Reaktors. In dem Diagramm darunter ist der Verlauf beider Werte entlang der Achse aufgetragen. Der geometrisch mittlere Durchmesser beträgt am Ende des Reaktors $D_{Pg} = 22 \text{ nm}$ und ist damit etwas kleiner als der berechnete Durchmesser des bimodal-monodispersen Modells. Die geometrische Standardabweichung steigt nach der Zündung des Präkursors auf einen Maximalwert von $\sigma_{g,max} = 1.86$ und fällt anschließend langsam ab. Dies ist auf den relativ langsamen Abbrand zurückzuführen, da ständig Monomere gebildet werden und die Größenverteilung durch intermodale Stöße der Monomerklasse mit der Partikelklasse und durch intramodale Stöße der Monomerklasse in die Breite gezogen wird. Nachdem die Reaktion abgeschlossen ist, finden nur noch intramodale Stöße der Partikelklasse statt und die geometrische Standardabweichung nimmt ab. Ein Vergleich mit den von TP6 durchgeführten Messungen (Abb. 3.29 rechts) zeigt,

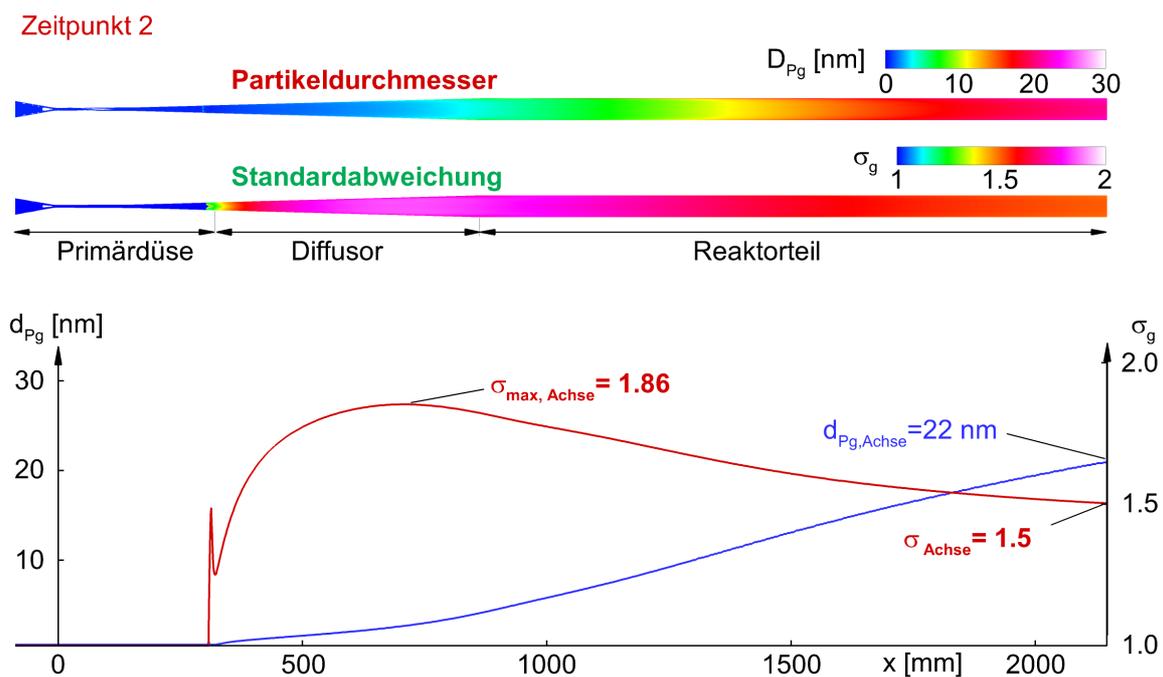


Abbildung 3.28: Berechnetes Partikelwachstum im GiP-Reaktor unter Verwendung des bimodal-polydispersen Partikelmodells zum Zeitpunkt 2

Oben: Darstellung des mittleren Durchmessers D_{Pg} und der geometrischen Standardabweichung σ_g auf der Symmetrieebene

Unten: Verlauf des mittleren Durchmessers D_{Pg} (blau) und der geometrischen Standardabweichung σ_g (rot) entlang der Kanalachse

dass auch die geometrische Standardabweichung für diesen Betriebspunkt sehr gut mit dem Experiment übereinstimmt. Diese beträgt in der Simulation am Ende des Reaktors $\sigma_{g,Sim.} = 1.5$ wohingegen die experimentelle Standardabweichung $\sigma_{g,Exp.} = 1.37$ ist. Im Gegensatz dazu zeigt die Rechnung für den Zeitpunkt 1 eine deutliche Abweichung (Abb. 3.29 links). Der mittlere Durchmesser ist mit $D_{Pg} = 14 \text{ nm}$ sehr viel kleiner als der experimentell ermittelte Durchmesser. Die geometrische Standardabweichung hingegen ist mit $\sigma_{g,Sim.} = 1.8$ sehr viel größer ($\sigma_{g,Exp.} = 1.40$).

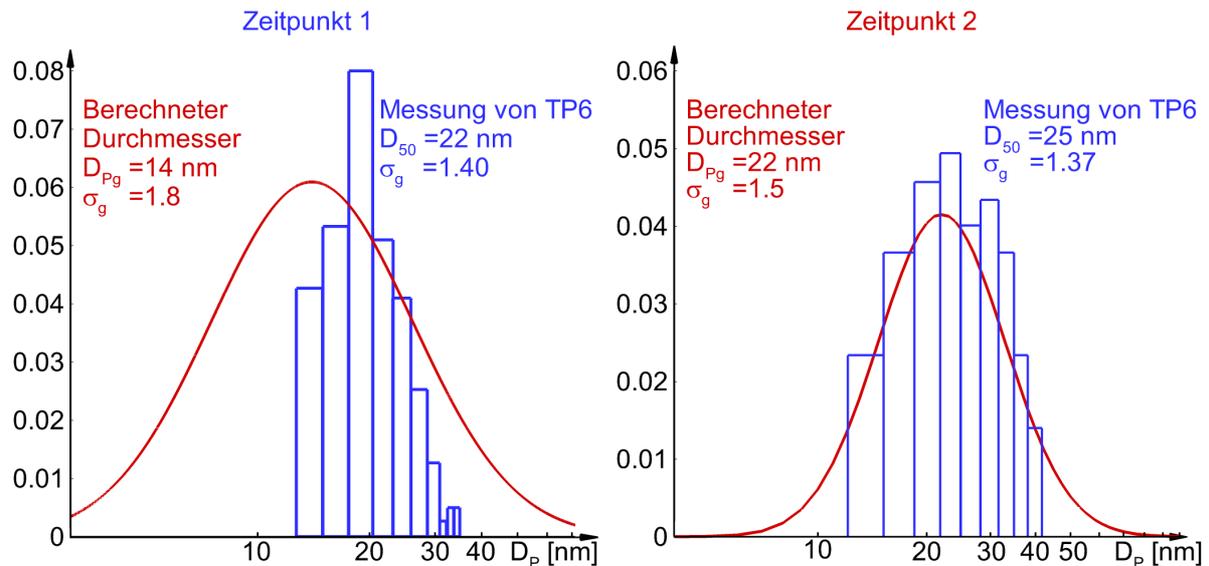


Abbildung 3.29: Validierung des bimodal-polydispersen Partikelmodells für zwei Betriebspunkte
 Dargestellt sind der geometrisch mittlere Durchmesser D_{Pg} und die geometrische Standardabweichung σ_g sowie die gemessene Partikelverteilung.

An dieser Stelle muss jedoch angemerkt werden, dass unter diesen Randbedingungen nicht dieselbe numerische Konvergenz erreicht werden konnte wie für den Zeitpunkt 2. Als Ursache kommt primär der langsame Abbrand des Präkursors infrage. Dadurch wird die geometrische Standardabweichung der Partikelklasse lokal noch größer als zum Zeitpunkt 2 und erreicht ein Maximum von $\sigma_{g,max} = 4$. Eine hohe Standardabweichung hat eine erhöhte Koagulationsrate zur Folge (siehe Gleichung 3.33 und 3.34), wodurch die Quellterme um mehrere Größenordnungen zunehmen und die zu lösenden Erhaltungsgleichungen steifer werden. Das bimodal-polydisperse Modell scheint daher für diesen Fall ungeeignet zu sein. Um dies zu überprüfen, wurden die Versuchsbedingungen zum Zeitpunkt 1 mit dem sektionalen Modell berechnet. Da das bimodal-polydisperse Modell eine breite Standardabweichung vorhersagt, wurden die Erhaltungsgleichungen für 32 Partikelklassen gelöst. Aufgrund des damit verbundenen Rechenaufwands wurden nur die Versuchsbedingungen zum Zeitpunkt 1 simuliert.

Berechneter Partikeldurchmesser mit dem sektionalen Modell

Ein Vergleich aller drei Modelle bestätigt, dass der unvollständige Abbrand des Präkursors zu einer extrem bimodalen Verteilung des Partikeldurchmessers führt. Wie der Abb. 3.30 zu entnehmen ist, zeigt das sektionale Modell (grüne Punkte) eine sehr hohe Konzentration an unverbranntem TEOS (rot markiert) und an Monomeren (orange markiert). Die Anzahlkonzentration der nachfolgenden Klassen nimmt stark ab und erreicht ein Minimum bei $D_P = 1.4 \text{ nm}$. Anschließend steigt die Anzahlkonzentration wieder an und die zweite Mode erreicht ihr Maximum bei $D_P = 28.3 \text{ nm}$.

Da dem bimodal-polydispersen Modell (magenta) zur Beschreibung des gesamten Partikelspektrums nur die Anzahlkonzentration, der geometrisch mittlere Durchmesser und die geometrische Standardabweichung zur Verfügung stehen, ist die Verteilung dementsprechend breit und der mittlere Durchmesser kleiner.

Auch das bimodal-monodisperse Modell (blau) zeigt daher einen geringfügig kleineren Durchmesser als der Peak der zweiten Mode des sektionalen Modells.

Bemerkenswert ist, dass die bimodalen Modelle trotz unterschiedlicher Koagulationskoeffizienten etwa die gleiche Anzahl an Monomeren vorhersagen.

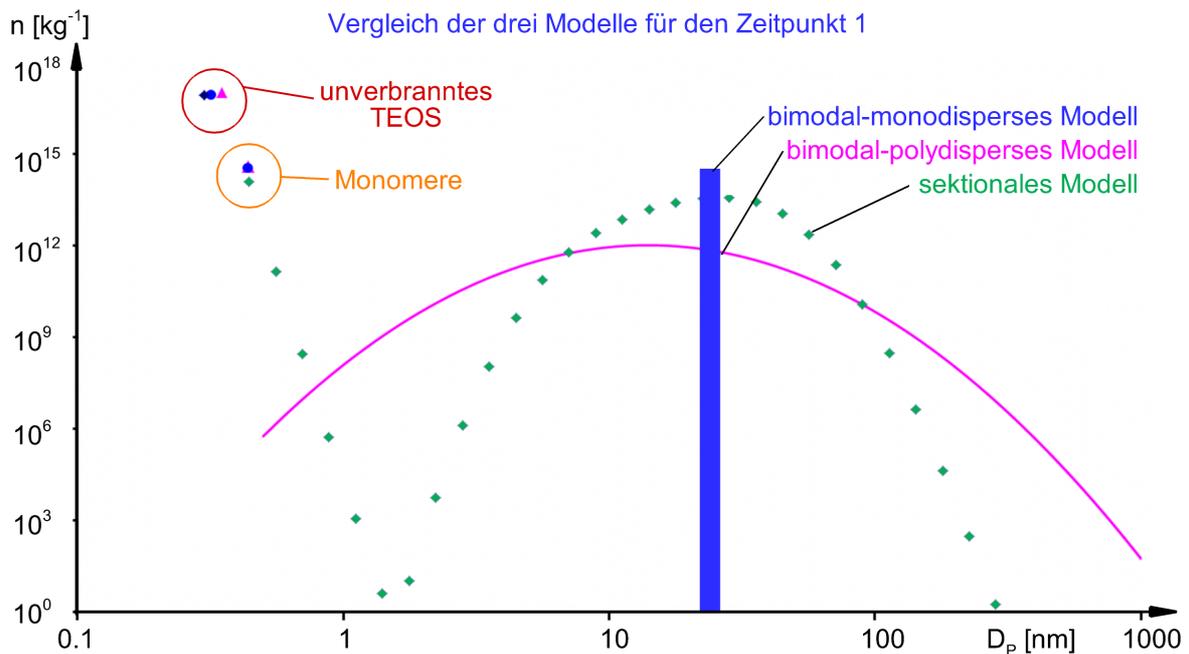


Abbildung 3.30: Vergleich der drei Partikelmodelle

Aufgetragen ist die Anzahlkonzentration des jeweiligen Partikeldurchmessers für das bimodal-monodisperse Modell (blau), das bimodal-polydispersive Modell (magenta) und das sektionale Modell (grün). Weiterhin ist die Monomeranzahlkonzentration der bimodalen Modelle und die Konzentration des unverbrannten Präkursors (willkürlich gewählter Durchmesser) für alle drei Modelle dargestellt.

Für einen Vergleich mit dem Experiment wird die maximale Anzahlkonzentration normiert, da die vom sektionalen Modell vorhergesagten kleinen Partikel ($D_P \lesssim 2 \text{ nm}$) experimentell mit der verwendeten Messtechnik nicht erfasst werden können. Um einen mittleren Durchmesser für das sektionale Modell zu bestimmen, werden aus dem selben Grund nur Partikel berücksichtigt, die größer als zwei Nanometer sind. Wie aus Abb. 3.31 hervorgeht, ist der so ermittelte mittlere Durchmesser geringfügig größer als der experimentell ermittelte Wert, gleichwohl auch hier von einer guten Übereinstimmung gesprochen werden kann.

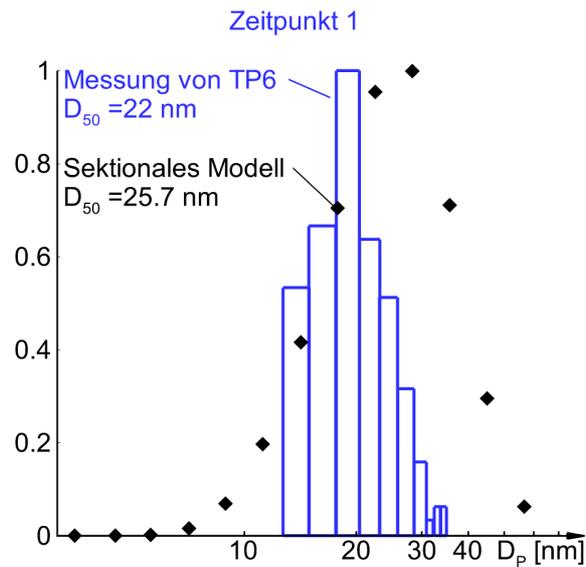


Abbildung 3.31: Vergleich der normierten Partikelanzahl des sektionalen Modells und des Experiments

3.6.3 Bewertung der Ergebnisse

Das bimodal-monodisperse Modell erweist sich als äußerst robust und erzielt unabhängig vom Betriebspunkt gute Ergebnisse bei gleichzeitig niedrigem Rechenaufwand. Eine Aussage über die zu erwartende Standardabweichung ist aber nicht möglich. Aufgrund der mitgeführten Anzahlkonzentration des Präkursors und der Monomere können jedoch grundlegende Aussagen über die Verbrennungskinetik getroffen werden. Daher eignet sich dieses Modell zur Planung und Auslegung solcher Partikelreaktoren. Auch Parametervariationen können damit schnell und effizient durchgeführt werden.

Das bimodal-polydisperse Modell hingegen ist nur bedingt geeignet. Vor allem im Falle einer langsamen Umsetzung des Präkursors kann die daraus resultierende, stark bimodale Verteilung des Durchmessers nicht korrekt wiedergegeben werden. Stattdessen wird

eine zu breite Größenverteilung vorhergesagt, die zu überhöhten Quelltermen führt. Die Folge sind numerische Konvergenzprobleme, die bis zur Instabilität des Modells führen können. Analog führen Rezirkulationsgebiete, wie sie beispielsweise im Plasmareaktor vorliegen, hinsichtlich der Durchmischung großer und kleiner Partikel zu numerischen Problemen und schlechten Ergebnissen.

Im Gegensatz dazu erweist sich das sektionale Modell als numerisch robust. Da das gesamte Spektrum an möglichen Partikeldurchmessern durch einzelne Erhaltungsgleichungen abgebildet wird, kann die Partikelgrößenverteilung sowohl für einen langsamen Präkursorabbrand als auch für Rezirkulationsgebiete qualitativ richtig wiedergegeben werden. Die einzige Schwäche des sektionalen Modells ist der extrem hohe Rechenaufwand. Eine Alternative für die Berechnung des Partikelwachstums im GiP-Reaktor wäre daher die Entwicklung eines gemischt-sektional-polydispersen Modells. Dabei könnte die erste Mode des Partikelspektrums, welche durch den langsamen Präkursorabbrand hervorgerufen wird, durch ein sektionales Modell beschrieben werden. Für die zweite Mode hingegen, welche die tatsächlich detektierbaren Partikel darstellt, wird ein polydisperses Modell zur Berechnung des Partikeldurchmessers und der Standardabweichung vorgeschlagen. So könnte der Rechenaufwand bei nahezu gleicher Ergebnisqualität signifikant reduziert werden. Mehrmodale Partikelspektren, die durch Rezirkulationsgebiete hervorgerufen werden, können mit diesem Ansatz allerdings auch nicht beschrieben werden.

Die Berechnung des Partikelwachstums im GiP-Reaktor bei zwei nahezu identischen Betriebspunkten zeigt, dass der Partikeldurchmesser sowohl in der Simulation als auch im Experiment aufgrund der relativ kalten Versuchsbedingungen und der langsamen Umsetzung des Präkursors extrem sensitiv auf eine Änderung der Randbedingung reagiert. In diesem Temperaturregime ist eine korrekte Berechnung des Partikeldurchmessers bzw. eine Validierung der Modelle anhand des Experiments folglich nur möglich, wenn alle Randbedingungen bestmöglich abgebildet werden. Zudem gewinnen untergeordnete Modellschwächen, wie beispielsweise die vereinfachte Beschreibung des Präkursorabbrands, an Bedeutung. Vor diesem Hintergrund übertrifft die extrem gute Übereinstimmung des bimodal-monodispersen Modells mit dem Experiment die Erwartungen bei weitem.

Für eine weitere Validierung der Modelle und deren Weiterentwicklung ist zukünftig eine genaue Kenntnis aller Parameter erforderlich. Zusätzlich muss die Modellierung der Verbrennungskinetik überprüft und gegebenenfalls verbessert werden. Neben der Verbrennung stellt die Sinterkinetik eine der primären Fragestellungen künftiger Untersuchungen dar. Weiterhin ist eine Erweiterung der Partikelmesstechnik sinnvoll, da die Auswertung einiger hundert Partikel über TEM-Bilder zwar aufschlussreich hinsichtlich der Morphologie der Partikel ist, aber die geringe Stichprobengröße als nichtrepräsentativ gewertet werden kann.

ZUSAMMENFASSUNG

Die „Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion“ stellt ein grundlegend neues Verfahren der Nanopartikelproduktion dar. Während der sechs Jahre des DFG-geförderten Gemeinschaftsprojekts PAK75 wurde der Prozess von der Idee über das Reißbrett bis hin zur produktionsfähigen Anlage entwickelt. Im Fokus dieser Arbeit standen numerische Strömungssimulationen, die einerseits der Entwicklung einzelner Komponenten dienten und andererseits die Klärung von Detailfragen hinsichtlich des auftretenden Pseudo-Stoßsystems sowie des Partikelwachstums zum Ziel hatten.

Erkenntnisse im Rahmen der Untersuchung des Pseudo-Stoßsystems

Um die Grundlage für eine numerische Analyse des Pseudo-Stoßsystems zu schaffen, wurde eine umfangreiche Validierung bestehender RANS-Turbulenzmodelle sowohl anhand projektinterner Messergebnisse als auch veröffentlichter Ergebnisse anderer Gruppen durchgeführt. Beurteilt wurden die Ergebnisse anhand des Druckverlaufs, der Stoßposition, der Form und Länge des Pseudo-Stoßsystems, der wandnahen Strömungsrichtung und des Grenzschichtprofils. Es konnte gezeigt werden, dass die Behandlung der Grenzschicht aber auch die Modellierung der Reynoldsspannungen einen signifikanten Einfluss auf die Form und Position der Ablösegebiete und des Pseudo-Stoßsystems haben. Dabei hat sich das Explizit Algebraische Reynolds-Spannungs-Modell (BSL-EARSM) hinsichtlich der Ergebnisqualität und des Rechenaufwands als bestes Modell erwiesen.

Nachfolgend konnte anhand numerischer Simulationen nachgewiesen werden, dass eine mehrfach dokumentierte Abweichung experimentell ermittelter Druckverläufe vom theoretischen Erwartungswert bei Pseudo-Stoßsystemen auf einen Bypassmassenstrom in kleinen Spalten zurückzuführen ist. Sowohl im Experiment als auch in der Simulation unterdrücken die einhergehenden Rezirkulationsgebiete einen Symmetriebruch des Pseudo-Stoßsystems. Treten die Spalte hingegen nur einseitig auf, so kann damit die Neigung des Shocktrains festgelegt und somit eine stochastisch auftretende laterale Oszillation verhindert werden. Dies könnte beispielsweise zur Stabilisierung der Strömungszustände in supersonischen Triebwerkseinläufen genutzt werden. Bedeutender ist jedoch die Erkenntnis, dass die Spalte, wie sie in Experimenten mit Seitenfenstern auftreten können, in der Simulation die axiale Oszillation des Pseudo-Stoßsystems beeinflussen. Lässt sich

dieser Effekt experimentell nachweisen, so wäre dies von nachhaltiger Bedeutung für bisherige und künftige Experimente zur allgemeinen Stoßoszillation.

Neben der Klärung der spaltinduzierten Abweichungen zwischen dem Experiment und der Simulation wurden passive Maßnahmen zur Beeinflussung bzw. Verkürzung des Pseudo-Stoßsystems durchgeführt. Die Weiterentwicklung der von AL-HASAN und SCHNERR [8] vorgeschlagenen Konturausbuchtung in einer rechteckigen Düse führte zu einer signifikanten Verkürzung des Shocktrains. In Abhängigkeit des Betriebspunktes tritt jedoch eine Hysterese in der Stoßposition bzw. eine instationäre Stoßposition auf. Wie anhand einer rotationssymmetrischen Düse gezeigt wurde, kann dies durch eine Modifikation der Konturausbuchtung vermieden und das Pseudo-Stoßsystem auf einen senkrechten Stoß reduziert werden.

Erkenntnisse durch die Erweiterung der Partikelmodellierung

Durch die gekoppelte Berechnung der Strömungszustände mittels CFD und des Partikelwachstums durch ein effizientes bimodal-monodisperses Modell wurde für eine experimentell durchgeführte Parametervariation an einem Plasmareaktor mit anschließendem Heißwand-Ofen vor allem für heiße Betriebsbedingungen eine sehr gute Übereinstimmung erzielt. Durch die Implementierung eines einfachen Nukleationsmodells wurde die Hypothese widerlegt, dass die Übersättigung im Plasmareaktor bei den gewählten Betriebsparametern einen signifikanten Einfluss auf den zu erwartenden Partikeldurchmesser hat. Um auch bei niedrigen Temperaturen bessere Ergebnisse zu erzielen und gegebenenfalls die experimentell ermittelten lokalen Maxima des Partikeldurchmessers für die Variation des Präkursormassenstroms und der Ofentemperatur zu erklären, wird die Entwicklung eines Sintermodells sowie die Anpassung der Verbrennungskinetik vorgeschlagen. Dies kann jedoch nur in Verbindung mit parallel durchgeführten Experimenten zielführend umgesetzt werden.

Die Validierung der Partikelmodelle am GiP-Reaktor ergab, dass das bimodal-monodisperse Modell unabhängig von der Reaktortemperatur gute Ergebnisse liefert. Da neben dem mittleren Partikeldurchmesser auch dessen geometrische Standardabweichung von hohem Interesse ist, wurden die gezeigten Betriebspunkte auch mit einem bimodal-polydispersen Modell nachgerechnet. Bei hohen Reaktortemperaturen zeigt sich auch hier eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Bei niedrigeren Temperaturen hingegen erweist sich das Modell jedoch als numerisch instabil. Der Partikeldurchmesser und dessen Verteilung werden nicht korrekt wiedergegeben. Um die Ursache hierfür zu klären, wurde ein sektionales Partikelmodell implementiert. Die Ergebnisse bekräftigen den Verdacht, dass die stark bimodale Verteilung des Partikeldurchmessers als Ursache infrage kommt.

Im Fokus künftiger Arbeiten sollte neben der Implementierung eines Sintermodells auch die Erweiterung der Verbrennungskinetik in Betracht gezogen werden. Das gegenwärtige Modell geht von einem vollständigen Zerfall des Präkursors aus. Denkbar wäre jedoch auch eine unvollständige Reaktion mit anschließender Nachreaktion während des Partikelwachstums. Dies könnte erklären, warum die Partikel auf den TEM-Bildern trotz der niedrigen Reaktortemperatur überwiegend sphärisch sind, wohingegen auf dem Filter des Reaktors agglomerierte und aggregierte Partikel detektiert werden.

Eine weitere interessante Fragestellung für künftige Untersuchungen ist, inwiefern die Partikelablagerung verhindert werden kann. Hierzu wäre die Implementierung der Partikelmodelle in einen LES-Code von Vorteil. Einerseits könnten die Wachstumsprozesse in der Grenzschicht im Detail analysiert werden. Andererseits wäre es möglich, weitere Effekte wie Thermophorese und Partikelablagerung in den Code implementieren und numerisch zu untersuchen.

Beiträge zum GiP-Projekt

Nach dem Bau und der Inbetriebnahme einer Pilotanlage erfolgte eine stetige Weiterentwicklung einzelner Anlagenkomponenten. Seitens des TP2 „Numerische Auslegung und Simulation der Gesamtanlage“ wurden hierzu unterstützend Strömungssimulationen zu den einzelnen Maßnahmen durchgeführt (siehe Kapitel 1.3.3). In dieser Arbeit wurden die numerischen Ergebnisse der optimierten Strömungsführung innerhalb der ersten und zweiten Lavaldüse als auch eine Simulation des Gesamtprozesses gezeigt.

Aus den numerisch und experimentell gewonnenen Erkenntnissen bezüglich des Gesamtprozesses lassen sich für zukünftige Untersuchungen weitere Maßnahmen und Fragestellungen ableiten:

- Um eine stabile Strömungsführung mit definierten Strömungszuständen in der ersten Düse zu gewährleisten, muss bei einer Neuauslegung der ersten Düse die thermische Verformung berücksichtigt und reduziert werden damit keine Spalte zwischen einzelnen Bauteilen auftreten. Von besonderer Bedeutung hierfür ist die Wahl eines geeigneten Materials, das einerseits eine glatte Oberfläche und einen geringen abrasiven Verschleiß bei hohen Temperaturen aufweist. Andererseits sollte das Material eine geringe Wärmeleitfähigkeit aufweisen, um die Verluste innerhalb der ersten Düse gering zu halten.
- Statt eines Methan betriebenen Porenbrenners sollte künftig die Aufheizung passiv über einen Mikrowellenerhitzer erfolgen. Auf diese Weise kann die Zusammensetzung des Trägergases vorab festgelegt und eine Kontamination mit Verbrennungsprodukten verhindert werden. Dadurch kann der Einfluss des Trägergases auf die

Verbrennung des Präkursors und die Partikelbildung untersucht und die Bandbreite an möglichen Präkursoren erhöht werden.

- Weiterhin wäre die Umsetzung des von TP2 entwickelten Quenchkonzepts ohne Wassereinspeisung von Vorteil, da so die Produktion von Partikeln ermöglicht wird, die unter Anwesenheit von Wasser zur Oxidation neigen.
- Ein wichtiger Aspekt hinsichtlich der Ergebnisqualität künftiger CFD-Simulationen ist die Erweiterung der Messtechnik. Dies betrifft sowohl die Zustände des Präkursorgemisches vor der Einspeisung als auch die Wandtemperaturen und die Wärmeverluste innerhalb der Anlage.
- Als Letztes sei nochmals auf die Ablagerungsproblematik der Partikel in der zweiten Düse hingewiesen. Ein mögliches Konzept ist die Wahl eines geeigneten Materials mit geringer Bindungsaffinität mit den erzeugten Partikeln. Weitere Konzepte sind die Einblasung eines Schutzfilms über eine poröse Wand oder die statische Aufladung der Wand.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] ABDALI, A., FIKRI, M., WIGGERS, H. & SCHULZ, C. 2009 Shock-tube study of the ignition delay time of tetraethoxysilane (TEOS). In *Shock Waves* (ed. K. Hannemann & F. Seiler), pp. 781–785. Springer Berlin Heidelberg.
- [2] ABDALI, A., MORITZ, B., GUPTA, A., WIGGERS, H. & SCHULZ, C. 2009 Investigating the gas-phase synthesis of non-agglomerated and aggregated silica nanoparticles. In *MRS fall meeting*. Boston, U.S.A.
- [3] ABDALI, A., MORITZ, B., GUPTA, A., WIGGERS, H. & SCHULZ, C. 2010 Hybrid microwave-plasma hot-wall reactor for synthesis of silica nanoparticles under well-controlled conditions. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials* **12** (3), pp. 440–444.
- [4] ADAMS, N. A. 2000 Direct simulation of the turbulent boundary layer along a compression ramp at $M = 3$ and $Re_\theta = 1685$. *Journal of Fluid Mechanics* **420**, pp. 47–83.
- [5] AL-HASAN, N. S. 2011 Numerische Untersuchung transsonischer reaktiver Strömungen zur gasdynamisch initiierten Partikelerzeugung . PhD thesis, Technische Universität München.
- [6] AL-HASAN, N. S., GIGLMAIER, M. & SCHNERR, G. H. 2009 Reactive 3-D Simulations of Continuous Shock Induced Particle Synthesis. In *European Aerosol Conference - EAC 2009*. Karlsruhe, Germany.
- [7] AL-HASAN, N. S., GIGLMAIER, M. & SCHNERR, G. H. 2010 Numerical Investigation of the 3-D Unsteady Reactive Flow within a Gas Dynamic Particle Reactor. In *World Congress on Particle Technology - WCPT6 2010*. Nürnberg, Germany.
- [8] AL-HASAN, N. S. & SCHNERR, G. H. 2007 Aerodynamic optimization of Laval nozzle flow with shocks: Numerical investigation of active/passive shock control via expansion fans. *PAMM* **7** (1), pp. 4110003–4110004.

- [9] AL-HASAN, N. S. & SCHNERR, G. H. 2008 3-D Modeling of Shock-induced Precursor Decomposition and Nano-Particle Growth. *PAMM* **8** (1), pp. 10581–10582.
- [10] ANSYS ® 2009 ANSYS-CFX-Solver Theory Guide. Release 12.1.
- [11] BALDWIN, B. & LOMAX, H. 1978 Thin-layer approximation and algebraic model for separated turbulent flows. In *AIAA, Aerospace Sciences Meeting*.
- [12] BECKER, R. & DÖRING, W. 1939 Kinetische Behandlung in übersättigten Dämpfen. In *Kinetik der Phasenbildung* (ed. M. Volmer), pp. 156–165. Leipzig: Verlag Steinkopf.
- [13] BEYDOUN, D., AMAL, R., LOW, G. & MCEVOY, S. 1999 Role of Nanoparticles in Photocatalysis. *Journal of Nanoparticle Research* **1** (4), pp. 439–458.
- [14] BILLIG, F. S. 1993 Research on supersonic combustion. *Journal of Propulsion and Power* **9** (4), pp. 499–514.
- [15] BLANDER, M. & KATZ, J. 1972 The thermodynamics of cluster formation in nucleation theory. *Journal of Statistical Physics* **4**, pp. 55–59.
- [16] BOGAR, T. J., KROUTIL, J. C. & SAJBEN, M. 1983 Characteristic frequencies of transonic diffuser flow oscillations. *AIAA Journal* **21**, pp. 1232–1240.
- [17] BOURGOING, A. & REIJASSE, P. 2001 Experimental investigation of an unsteady and asymmetrical supersonic separated flow. *Tech. Rep.* ONERA-TP-01-95.
- [18] BOURGOING, A. & REIJASSE, P. 2005 Experimental analysis of unsteady separated flows in a supersonic planar nozzle. *Shock Waves* **14**, pp. 251–258.
- [19] BUNDESAMT FÜR SICHERHEIT IN DER INFORMATIONSTECHNIK 2007 Nanotechnologie.
- [20] CABRERA, N. 1950 Note on Surface Diffusion in Sintering of Metallic Particles. In *AIME Transactions*, **188**, pp. 667–668.
- [21] CARROLL, B. F. & DUTTON, J. C. 1990 Characteristics of multiple shock wave/turbulent boundary-layer interactions in rectangular ducts. *Journal of Propulsion and Power* **6** (2), pp. 186–193.
- [22] CARROLL, B. F. & DUTTON, J. C. 1992 Turbulence phenomena in a multiple normal shock wave/turbulent boundary layer interaction. *AIAA Journal* **30** (1), pp. 43–48.

- [23] CHEN, C. P., SAJBEN, M. & KROUTIL, J. C. 1979 Shock-Wave Oscillations in a Transonic Diffuser Flow. *AIAA Journal* **17** (10), pp. 1076–1083.
- [24] CIENTIFICA LTD. 2007 The Nanotech Revolution in Drug Delivery. http://www.cientifica.com/WhitePapers/054_Drug_Delivery_White_Paper.pdf, abgerufen am 30.10.2012.
- [25] COBLE, R. L. 1958 Initial Sintering of Alumina and Hematite. *Journal of the American Ceramic Society* **41** (2), pp. 55–62.
- [26] COLVIN, V. L., SCHLAMP, M. C. & ALIVISATOS, A. P. 1994 Light-emitting diodes made from cadmium selenide nanocrystals and a semiconducting polymer. *Nature* **370**, pp. 354–357.
- [27] COURTNEY, W. G. 1961 Remarks on Homogeneous Nucleation. *The Journal of Chemical Physics* **35** (6), pp. 2249–2250.
- [28] CROCCO, L. 1958 One-Dimensional Treatment of Steady Gas Dynamics. In *Fundamentals of Gas Dynamics* (ed. H. W. Emmons), **3**, pp. 64–349. Princeton University Press.
- [29] DAHNEKE, B. 1983 Simple Kinetic Theory of Brownian Diffusion in Vapors and Aerosols. In *Theory of Dispersed Multiphase Flow* (ed. R. Meyer), pp. 97–133. New York: Academic Press.
- [30] DOLLING, D. S. & MURPHY, M. T. 1983 Unsteadiness of the separation shock wave structure in a supersonic compression ramp flowfield. *AIAA Journal* **21**, pp. 1628–1634.
- [31] DOLLING, D. S. & OR, C. T. 1985 Unsteadiness of the shock wave structure in attached and separated compression ramp flows. *Experiments in Fluids* **3**, pp. 24–32.
- [32] DUSSAUGE, J. P., DUPONT, P. & DEBIEVE, J. F. 2006 Unsteadiness in shock wave boundary layer interactions with separation. *Aerospace Science and Technology* **10** (2), pp. 85 – 91.
- [33] EHRMAN, S., FRIEDLANDER, S. & ZACHARIAH, M. 1998 Characteristics of $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ nanocomposite particles formed in a premixed flat flame. *Journal of Aerosol Science* **29** (5–6), pp. 687 – 706.
- [34] FEYNMAN, R. P. 1960 There's Plenty of Room at the Bottom. *Caltech Engineering and Science* **23** (5), pp. 22–36.

- [35] FRENKEL, J. 1939 A General Theory of Heterophase Fluctuations and Pretransition Phenomena. *The Journal of Chemical Physics* **7** (7), pp. 538–547.
- [36] FRENKEL, J. 1945 Viscous Flow of Crystalline Bodies under the Action of Surface Tension. *Journal of Physics USSR* **9**, pp. 385–391.
- [37] FRENKLACH, M. & HARRIS, S. J. 1987 Aerosol dynamics modeling using the method of moments. *Journal of Colloid and Interface Science* **118** (1), pp. 252 – 261.
- [38] FRIEDLANDER, S. K. 2000 *Smoke, Dust, and Haze: Fundamentals of Aerosol Dynamics*, 2nd edn. Oxford University Press.
- [39] GAWEHN, T., GIGLMAIER, M., QUAATZ, J. F., GÜLHAN, A. & ADAMS, N. A. 2011 Pseudo-shock system structure in rectangular Laval nozzles with gaps. In *28th International Symposium on Shock Waves - ISSW 28*. Manchester, UK.
- [40] GAWEHN, T., GÜLHAN, A., GIGLMAIER, M., QUAATZ, J. F. & ADAMS, N. A. 2012 Analysis of gap influence on pseudo-shock system asymmetry in rectangular Laval nozzles. In *International Shock Interaction Symposium - ISIS20*. Stockholm, Sweden.
- [41] GAWEHN, T., GÜLHAN, A., AL-HASAN, N. S. & SCHNERR, G. H. 2010 Experimental and numerical analysis of the structure of pseudo-shock systems in laval nozzles with parallel side walls. *Shock Waves* **20**, pp. 297–306.
- [42] GAWEHN, T., GÜLHAN, A., GIGLMAIER, M., AL-HASAN, N. S., QUAATZ, J. F. & ADAMS, N. A. 2010 Analysis of pseudo-shock system structure and asymmetry in Laval nozzles with parallel side walls. In *19th International Shock Interaction Symposium*. Moscow, Russia.
- [43] GIESEN, B. 2005 Modellierung und Simulation der Synthese von Nanopartikeln in der Gasphas. PhD thesis, Universität Duisburg-Essen.
- [44] GIGLMAIER, M., AL-HASAN, N. S. & ADAMS, N. A. 2010 3-D Simulation of the Production of Gas-phase synthesized Non-aggregated Spherical Nano-particles in Continuous Gasdynamic Flow Particle-Laden Flows. In *7th International Conference on Multiphase Flow - ICMF 2010 Proceedings*. Tampa, FL USA.
- [45] GIGLMAIER, M., AL-HASAN, N. S., QUAATZ, J. F. & ADAMS, N. A. 2010 Numerical prediction of average size and size distribution of gasdynamically generated nano-particles by coupled reactive 3-D CFD simulations and comparison

- to experimental data. In *International Aerosol Conference - IAC2010*. Helsinki, Finland.
- [46] GIGLMAIER, M., QUAATZ, J. F., ADAMS, N. A., GAWEHN, T. & GÜHLHAN, A. 2012 Impact of bypass mass flow on shock motion in pseudo-shock systems. In *International Shock Interaction Symposium - ISIS20*. Stockholm, Sweden.
- [47] GIGLMAIER, M., QUAATZ, J. F., GAWEHN, T., GÜLHAN, A. & ADAMS, N. A. 2011 Numerical and experimental investigation of the effect of bypass mass flow due to small gaps in a transonic channel flow. In *28th International Symposium on Shock Waves - ISSW 28*. Manchester, UK.
- [48] GIGLMAIER, M., QUAATZ, J. F., MATHEIS, J. & ADAMS, N. A. 2011 Numerical Analysis of particle growth in a microwave driven plasma reactor and comparison to experimental data. In *European Aerosol Conference - EAC 2011*. Manchester, UK.
- [49] GOERTZ, V. 2009 Teilprojekt TP6. Persönliche Mitteilung.
- [50] GOERTZ, V., KORP, D., AL-HASAN, N., GIGLMAIER, M. & NIRSCHL, H. 2011 Experimental study of gas-dynamically induced nanoparticle synthesis by use of adapted sampling probes. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* **50** (8), pp. 836 – 845.
- [51] GRILLI, M., SCHMIDT, P. J., HICKEL, S. & ADAMS, N. A. 2012 Analysis of unsteady behavior in shockwave turbulent boundary layer interaction. *Journal of Fluid Mechanics* (accepted).
- [52] GRZONA, A. & OLIVIER, H. 2011 Shock train generated turbulence inside a nozzle with a small opening angle. *Experiments in Fluids* **51**, pp. 621–639.
- [53] GRZONA, A. & OLIVIER, H. 2012 Experimental Investigation of Shock Train Induced Turbulence. In *28th International Symposium on Shock Waves* (ed. K. Kontis), pp. 135–140. Springer Berlin Heidelberg.
- [54] HADJADJ, A. & DUSSAUGE, J.-P. 2009 Shock wave boundary layer interaction. *Shock Waves* **19**, pp. 449–452.
- [55] HAHN, H., LOGAS, J. & AVERBACK, R. S. 1990 Sintering characteristics of nanocrystalline TiO_2 . *Journal of Materials Research* **5**, pp. 609–614.
- [56] HÄNEL, D. 2004 *Molekulare Gasdynamik - Einführung in die kinetische Theorie der Gase und Lattice-Boltzmann-Methoden*. Berlin, Germany: Springer-Verlag.

- [57] HERRMANN, D., BLEM, S. & GÜLHAN, A. 2011 Experimental Study of Boundary-Layer Bleed Impact on Ramjet Inlet Performance. *Journal of Propulsion and Power* **27** (6), pp. 1186–1195.
- [58] HERZLER, J., MANION, J. A. & TSANG, W. 1997 Single-pulse shock tube study of the decomposition of tetraethoxysilane and related compounds. *The Journal of Physical Chemistry A* **101** (30), pp. 5500–5508.
- [59] HETHERINGTON, G., JACK, K. & KENNEDY, J. 1964 The viscosity of vitreous silica. *Physics and Chemistry of Glasses* **5**, pp. 130–136.
- [60] HICKEL, S., TOUBER, E., BODART, J. & LARSSON, J. 2012 A parametrized non-equilibrium wall-model for large-eddy simulations. In *Proceedings of the 2012 Summer Program*. Center for Turbulence Research, Stanford University.
- [61] HOBBS, P. V. & MASON, B. J. 1964 The sintering and adhesion of ice. *Philosophical Magazine* **9** (98), pp. 181–197.
- [62] HOUNSLOW, M. J., RYALL, R. L. & MARSHALL, V. R. 1988 A discretized population balance for nucleation, growth, and aggregation. *AIChE Journal* **34** (11), pp. 1821–1832.
- [63] ICHINOSE, N., OZAKI, Y., JAMES, M. & KASHŪ, S. 1991 *Superfine particle technology*. Springer.
- [64] JEONG, J. I. & CHOI, M. 2001 A sectional method for the analysis of growth of polydisperse non-spherical particles undergoing coagulation and coalescence. *Journal of Aerosol Science* **32** (5), pp. 565 – 582.
- [65] JEONG, J. I. & CHOI, M. 2003 A simple bimodal model for the evolution of non-spherical particles undergoing nucleation, coagulation and coalescence. *Journal of Aerosol Science* **34** (8), pp. 965 – 976.
- [66] JEONG, J. I. & CHOI, M. 2004 A bimodal moment model for the simulation of particle growth. *Journal of Aerosol Science* **35** (9), pp. 1071 – 1090.
- [67] JOHANNESSEN, T., PRATSINIS, S. E. & LIVBJERG, H. 2001 Computational analysis of coagulation and coalescence in the flame synthesis of titania particles. *Powder Technology* **118** (3), pp. 242 – 250.
- [68] JOHNSON, A. D. & PAPAMOSCHOU, D. 2010 Instability of shock-induced nozzle flow separation. *Physics of Fluids* **22** (1).

- [69] JOHNSON, D. L. 1969 New Method of Obtaining Volume, Grain-Boundary, and Surface Diffusion Coefficients from Sintering Data. *Journal of Applied Physics* **40** (1), pp. 192–200.
- [70] JONES, W. P. & LAUNDER, B. E. 1972 The prediction of laminarization with a two-equation model of turbulence. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **15** (2), pp. 301 – 314.
- [71] KIM, Y. P. & SEINFELD, J. H. 1990 Simulation of multicomponent aerosol condensation by the moving sectional method. *Journal of Colloid and Interface Science* **135** (1), pp. 185 – 199.
- [72] KINGERY, W. D. & BERG, M. 1955 Study of the Initial Stages of Sintering Solids by Viscous Flow, Evaporation-Condensation, and Self-Diffusion. *Journal of Applied Physics* **26** (10), pp. 1205–1212.
- [73] KIRCHHOF, M. 2008 Sinterkinetik nanoskaliger Partikel. PhD thesis, Universität Erlangen-Nürnberg.
- [74] KISTLER, A. L. 1964 Fluctuating Wall Pressure under a Separated Supersonic Flow. *The Journal of the Acoustical Society of America* **36** (3), pp. 543–550.
- [75] KOCH, W. & FRIEDLANDER, S. K. 1990 The effect of particle coalescence on the surface area of a coagulating aerosol. *Journal of Colloid and Interface Science* **140** (2), pp. 419 – 427.
- [76] KOCH, W. & FRIEDLANDER, S. K. 1991 Particle Growth by Coalescence and Agglomeration. *Particle & Particle Systems Characterization* **8** (1-4), pp. 86–89.
- [77] KODAS, T. T. & HAMPDEN-SMITH, M. J. 1999 *Aerosol processing of materials*. Wiley-VCH.
- [78] KOWALIK, A. 2007 Modellierung und Simulation der Synthese von Eisen-Nanopartikeln in Gasphasenreaktoren. PhD thesis, Universität Duisburg-Essen.
- [79] KRUIS, F. E., FISSAN, H. & PELED, A. 1998 Synthesis of nanoparticles in the gas phase for electronic, optical and magnetic applications - a review. *Journal of Aerosol Science* **29** (5–6), pp. 511 – 535.
- [80] KRUIS, F. E., KUSTERS, K. A., PRATSINIS, S. E. & SCARLETT, B. 1993 A Simple Model for the Evolution of the Characteristics of Aggregate Particles Undergoing Coagulation and Sintering. *Aerosol Science and Technology* **19** (4), pp. 514–526.

- [81] KUCZYNSKI, G. C. 1949 Study of the Sintering of Glass. *Journal of Applied Physics* **20** (12), pp. 1160–1163.
- [82] KUCZYNSKI, G. C. 1950 Measurement of Self-Diffusion of Silver without Radioactive Tracers. *Journal of Applied Physics* **21** (7), pp. 632–635.
- [83] KUMAR, S. & RAMKRISHNA, D. 1996 On the solution of population balance equations by discretization - I. A fixed pivot technique. *Chemical Engineering Science* **51** (8), pp. 1311 – 1332.
- [84] KUMAR, S. & RAMKRISHNA, D. 1996 On the solution of population balance equations by discretization - II. A moving pivot technique. *Chemical Engineering Science* **51** (8), pp. 1333 – 1342.
- [85] LAUNDER, B. E., REECE, G. J. & RODI, W. 1975 Progress in the development of a Reynolds-stress turbulence closure. *Journal of Fluid Mechanics* **68**, pp. 537–566.
- [86] LEHTINEN, K. E., WINDELER, R. S. & FRIEDLANDER, S. K. 1996 Prediction of nanoparticle size and the onset of dendrite formation using the method of characteristic times. *Journal of Aerosol Science* **27** (6), pp. 883 – 896, Fuchs Memorial Issue.
- [87] LOGINOV, M. S., ADAMS, N. A. & ZHELTOVODOV, A. A. 2006 Large-eddy simulation of shock-wave/turbulent-boundary-layer interaction. *Journal of Fluid Mechanics* **565**, pp. 135–169.
- [88] MARQUARDT, P. 1999 Dielectric properties and potential applications of nanocrystal networks. *Applied Physics A: Materials Science & Processing* **68**, pp. 211–224.
- [89] MATIJEVIC, E. 1993 Preparation and properties of uniform size colloids. *Chemistry of Materials* **5** (4), pp. 412–426.
- [90] MATSUO, K. & KIM, H. D. 1993 Normal shock wave oscillations in supersonic diffusers. *Shock Waves* **3**, pp. 25–33.
- [91] MATSUO, K., MIYAZATO, Y. & KIM, H.-D. 1999 Shock train and pseudo-shock phenomena in internal gas flows. *Progress in Aerospace Sciences* **35** (1), pp. 33 – 100.
- [92] MATSUO, K., MOCHIZUKI, H., MIYAZATO, Y. & GOHYA, M. 1993 Oscillatory Characteristics of a Pseudo-Shock Wave in a Rectangular Straight Duct. *JSME international journal. Ser. B, Fluids and thermal engineering* **36** (2), pp. 222–229.

- [93] MENTER, F. R. 1994 Two-equation eddy-viscosity turbulence models for engineering applications. *AIAA Journal* **32** (8), pp. 1598–1605.
- [94] NIEMAN, G. W., WEERTMAN, J. R. & SIEGEL, R. W. 1991 Mechanical behavior of nanocrystalline Cu and Pd. *Journal of Materials Research* **6**, pp. 1012–1027.
- [95] OLIVIER, H. 2001 Gasdynamisch induzierte Partikelproduktion - Abschlussbericht des PAK 75. *Tech. Rep.*. DFG.
- [96] OLSON, B. J. & LELE, S. K. 2011 Large-Eddy Simulation of an over-expanded planar nozzle. In *41st AIAA Fluid Dynamics Conference and Exhibit*. Honolulu, Hawaii.
- [97] OSTWALD, W. 1915 *Die Welt der vernachlässigten Dimensionen*. Steinkopff-Verlag.
- [98] OTTO, E., FISSAN, H., PARK, S. & LEE, K. 1999 The log-normal size distribution theory of brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: part II—analytical solution using Dahneke’s coagulation kernel. *Journal of Aerosol Science* **30** (1), pp. 17 – 34.
- [99] VAN OUDHEUSDEN, B., JÖBSIS, A., SCARANO, F. & SOUVEREIN, L. 2011 Investigation of the unsteadiness of a shock-reflection interaction with time-resolved particle image velocimetry. *Shock Waves* **21**, pp. 397–409.
- [100] OXTOBY, D. W. 1992 Homogeneous nucleation: theory and experiment. *Journal of Physics: Condensed Matter* (4), pp. 7627–7650.
- [101] PANDA, S. & PRATSINIS, S. 1995 Modeling the synthesis of aluminum particles by evaporation-condensation in an aerosol flow reactor. *Nanostructured Materials* **5** (7–8), pp. 755 – 767.
- [102] PAPAMOSCHOU, D. & JOHNSON, A. 2006 Unsteady phenomena in supersonic nozzle flow separation. *AIAA Paper* (2006-3360).
- [103] PAPAMOSCHOU, D. & ZILL, A. 2004 Fundamental Investigation of Supersonic Nozzle Flow Separation. *AIAA Paper* (2004-1111).
- [104] PAPAMOSCHOU, D., ZILL, A. & JOHNSON, A. 2009 Supersonic flow separation in planar nozzles. *Shock Waves* **19**, pp. 171–183.

- [105] PARK, K. S., LEE, B. W. & CHOI, M. 1999 An Analysis of Aerosol Dynamics in the Modified Chemical Vapor Deposition. *Aerosol Science and Technology* **31** (4), pp. 258–274.
- [106] PARK, S. & ROGAK, S. 2004 A novel fixed-sectional model for the formation and growth of aerosol agglomerates. *Journal of Aerosol Science* **35** (11), pp. 1385 – 1404.
- [107] PINES, B. Y. 1954 On diffusion in metals and alloys. *Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **52**, pp. 501.
- [108] PIPONNIAU, S., DUSSAUGE, J. P., DEBIÈVE, J. F. & DUPONT, P. 2009 A simple model for low-frequency unsteadiness in shock-induced separation. *Journal of Fluid Mechanics* **629**.
- [109] PITKÄNEN, A., MÄKELÄ, J. M., NURMINEN, M., OKSANEN, A., JANKA, K., KESKINEN, J., KESKINEN, H., LIIMATAINEN, J. K., HELLSTÉN, S. & MÄÄTTÄ, T. 2005 Numerical study of silica particle formation in turbulent H_2/O_2 flame. *IFRF Combustion journal* pp. 1–29.
- [110] QUAATZ, J. F., GIGLMAIER, M. & ADAMS, N. A. 2011 Assessment of Coupled 3-D CFD Simulations with Three Size Distribution Models to Predict the Coagulation of Nanoparticles in Transonic Flows. In *European Aerosol Conference - EAC 2011*. Manchester, UK.
- [111] QUAATZ, J. F., GIGLMAIER, M., HICKEL, S. & ADAMS, N. A. 2012 Large-Eddy Simulation of a pseudo-shock system in a choked Laval nozzle. In *International Shock Interaction Symposium - ISIS20*. Stockholm, Sweden.
- [112] RAKEL, T. 2011 Experimentelle und numerische Untersuchungen zum Quenchen heißer Gase durch Überschallexpansion mit nachfolgender Wasserverdampfung. PhD thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- [113] REISS, H., KATZ, J. L. & COHEN, E. R. 1968 Translation–Rotation Paradox in the Theory of Nucleation. *The Journal of Chemical Physics* **48** (12), pp. 5553–5560.
- [114] REISS, H., KEGEL, W. & KATZ, J. 1997 Resolution of the Problems of Replacement Free Energy, $1/S$, and Internal Consistency in Nucleation Theory by Consideration of the Length Scale for Mixing Entropy. *Physical Review Letters* **78** (23), pp. 4506–4509.

- [115] ROCKLAND, J. 1966 On the rate equation for sintering by surface diffusion. *Acta Metallurgica* **14** (10), pp. 1273 – 1279.
- [116] ROCKLAND, J. 1967 The determination of the mechanism of sintering. *Acta Metallurgica* **15** (2), pp. 277 – 286.
- [117] RUMPF, H., SOMMER, K. & STEIER, K. 1976 Mechanismen der Haftkraftverstärkung bei der Partikelhaftung durch plastisches Verformen, Sintern und viskoelastisches Fließen. *Chemie Ingenieur Technik* **48** (4), pp. 300–307.
- [118] SACHVERSTÄNDIGENRAT FÜR UMWELTFRAGEN 2011 Vorsorgestrategien für Nanomaterialien. [http://www.umweltrat.de/SharedDocs/Downloads/DE/02_Sondergutachten/2011_09_SG_Vorsorgestrategien für Nanomaterialien.pdf](http://www.umweltrat.de/SharedDocs/Downloads/DE/02_Sondergutachten/2011_09_SG_Vorsorgestrategien_für_Nanomaterialien.pdf), abgerufen am 30.10.2012.
- [119] SAMSONOV, G. V. 1973 *The Oxide handbook. Edited by G. V. Samsonov. Translated from Russian by C. Nigel Turton and Tatiana I. Turton.* IFI/Plenum, New York.
- [120] SATTLER, K., MÜHLBACH, J. & RECKNAGEL, E. 1980 Generation of Metal Clusters Containing from 2 to 500 Atoms. *Phys. Rev. Lett.* **45**, pp. 821–824.
- [121] SCHILD, A., GUTSCH, A., MÜHLENWEG, H. & PRATSINIS, S. 1999 Simulation of Nanoparticle Production in Premixed Aerosol Flow Reactors by Interfacing Fluid Mechanics and Particle Dynamics. *Journal of Nanoparticle Research* **1**, pp. 305–315.
- [122] SCHLICHTING, H. & GERSTEN, K. 2006 *Grenzschicht-Theorie.*
- [123] SCHWADE, B. & ROTH, P. 2003 Simulation of nano-particle formation in a wall-heated aerosol reactor including coalescence. *Journal of Aerosol Science* **34** (3), pp. 339 – 357.
- [124] SCHWED, P. 1951 Technical Notes - Surface Diffusion in Sintering of Spheres on Planes. In *AIME Transactions*, **191**, pp. 245–246.
- [125] SETTLES, G. S. & DODSON, L. J. 1994 Supersonic and hypersonic shock/boundary-layer interaction database. *AIAA Journal* **32**, pp. 1377–1383.
- [126] SKILLAS, G., BECKER, C., MÜHLENWEG, H. & BEHNISCH, J. 2005 Simulation of particulates in a carbon black reactor. *Journal of Nanoparticle Research* **7** (1), pp. 15–27.

- [127] SMOLUCHOWSKI, M. V. 1916 Drei Vorträge über Diffusion, Brownsche Bewegung und Koagulation von Kolloidteilchen. *Zeitschrift für Physik* **17**, pp. 557–585.
- [128] SPALART, P. R. & ALLMARAS, S. R. 1992 A one equation turbulence model for aerodynamic flows. AIAA Paper 92–439. AIAA.
- [129] SPEZIALE, C. G., SARKAR, S. & GATSKI, T. B. 1991 Modelling the pressure-strain correlation of turbulence - An invariant dynamical systems approach. *Journal of Fluid Mechanics* **227**, pp. 245–272.
- [130] SQUIRE, L. C. 1996 Interaction of swept and unswept normal shock waves with boundary layers. *AIAA Journal* **34** (10), pp. 2099–2101.
- [131] SUN, L., SUGIYAMA, H., MIZOBATA, K., MINATO, R. & TOJO, A. 2005 Numerical and Experimental Investigations on Mach 2 and 4 Pseudo-Shock Waves in a Square Duct. *Transactions of the Japan Society for Aeronautical and Space Sciences* **47**, pp. 124–130.
- [132] SURYANARAYANA, C. 1995 Nanocrystalline materials. *International Materials Reviews* **40** (2), pp. 41–64.
- [133] TAMAKI, T., TOMITA, Y. & YAMANE, R. 1970 A Research on Pseudo-shock, 1st report, λ -type Pseudo-shock. *Bulletin of the Japanese Society of Mechanical Engineers* **13** (55), pp. 51–58.
- [134] TAMAKI, T., TOMITA, Y. & YAMANE, R. 1971 A Research on Pseudo-shock, 2nd report, X -type Pseudo-shock. *Bulletin of the Japanese Society of Mechanical Engineers* **14** (74), pp. 807–817.
- [135] TSANTILIS, S., KAMMLER, H. & PRATSINIS, S. 2002 Population balance modeling of flame synthesis of titania nanoparticles. *Chemical Engineering Science* **57** (12), pp. 2139 – 2156.
- [136] TSANTILIS, S., PRATSINIS, S. & HAAS, V. 1999 Simulation of synthesis of palladium nanoparticles in a jet aerosol flow condenser. *Journal of Aerosol Science* **30** (6), pp. 785 – 803.
- [137] TSANTILIS, S. & PRATSINIS, S. E. 2000 Evolution of primary and aggregate particle-size distributions by coagulation and sintering. *AIChE Journal* **46** (2), pp. 407–415.
- [138] ULRICH, G. D. & SUBRAMANIAN, N. S. 1977 III. Coalescence as a Rate-Controlling Process. *Combustion Science and Technology* **17** (3-4), pp. 119–126.

- [139] VOGELSBERGER, W. & MARX, G. 1976 Zur Krümmungsabhängigkeit der Oberflächenspannung kleiner Tröpfchen. *Z. Phys. Chem.* **257**, pp. 580–586.
- [140] VOLMER, M. & WEBER, A. 1926 Keimbildung in übersättigten Gebilden. *Z. Phys. Chem.* **119**, pp. 277–301.
- [141] WALLIN, S. & JOHANSSON, A. V. 2000 An explicit algebraic Reynolds stress model for incompressible and compressible turbulent flows. *Journal of Fluid Mechanics* **403**, pp. 89–132.
- [142] WATANABE, J., LEE, S., MASUYA, G., KOUCHI, T. & TAKITA, K. 2012 Large-Eddy Simulation of Pseudo-Shock Wave in a Square Duct. In *18th AIAA/3AF International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference*. Tours, France.
- [143] WEGNER, K., PRATSINIS, S. E. & KÖHLER, M. 2004 Nanomaterialien und Nanotechnologie. In *Chemische Technik: Prozesse und Produkte, Band 2: Neue Technologien*, pp. 821–905. Wiley-VCH Verlag.
- [144] WEGNER, K., STARK, W. J. & PRATSINIS, S. E. 2002 Flame-nozzle synthesis of nanoparticles with closely controlled size, morphology and crystallinity. *Materials Letters* **55** (5), pp. 318 – 321.
- [145] WEISS, A. & OLIVIER, H. 2012 Behavior of a shock train under the influence of boundary-layer suction by a normal slot. *Exp. Fluids* **52**, pp. 273 – 287.
- [146] WEISS, A. & OLIVIER, H. 2012 Influence of a Normal Slot Boundary Layer Suction System onto a Shock Train. In *28th International Symposium on Shock Waves* (ed. K. Kontis), pp. 141–146. Springer Berlin Heidelberg.
- [147] WILCOX, D. C. 1986 Multiscale model for turbulent flows. In *24th AIAA Aerospace Sciences Meeting*.
- [148] WILCOX, D. C. 1998 *Turbulence Modeling for CFD*, 2nd edn. DCW Industries, Inc.
- [149] WU, J. J. & FLAGAN, R. C. 1988 A discrete-sectional solution to the aerosol dynamic equation. *Journal of Colloid and Interface Science* **123** (2), pp. 339 – 352.
- [150] WU, M. K., WINDELER, R. S., STEINER, C. K. R., BÖRS, T. & FRIEDLANDER, S. K. 1993 Controlled Synthesis of Nanosized Particles by Aerosol Processes. *Aerosol Science and Technology* **19** (4), pp. 527–548.

- [151] XIAO, Q., TSAI, H. M. & PAPAMOSCHOU, D. 2007 Numerical investigation of supersonic nozzle flow separation. *AIAA Journal* **45** (3), pp. 532–541.
- [152] XIONG, Y. & PRATSINIS, S. E. 1993 Formation of agglomerate particles by coagulation and sintering - Part I. A two-dimensional solution of the population balance equation. *Journal of Aerosol Science* **24** (3), pp. 283 – 300.
- [153] ZACHARIAH, M. R. & CARRIER, M. J. 1999 Molecular dynamics computation of gas-phase nanoparticle sintering: a comparison with phenomenological models. *Journal of Aerosol Science* **30** (9), pp. 1139 – 1151.
- [154] ZELDOVICH, Y. B. 1943 On the theory of new phase formation: cavitation. *Acta Physicochim USSR* **18**, pp. 1–22.