Forschungsprojekt der

Hochschule Osnabrück
University of Applied Sciences

Labor für Angewandte Thermodynamik

Abschlussbericht

Katalytischer Wasserstoff-/Propan-/Synthesegas-Brenner zur Wasserdampf-Reformierung von Propan in einem SOFC-System kleiner Leistung

Niedersächsischer Forschungsverbund

„Autarkes, thermisch hochintegriertes SOFC-Brennstoffzellen-System kleiner Leistung auf Propanbasis“

Prof. Dr.-Ing. L. Mardorf

M. Heiker, M.Sc.

H. Nordhaus, B.Sc.

Dipl.-Ing. P. Menger

Osnabrück, Mai 2013

Inhaltsverzeichnis

1. Rahmenbedingungen ... 2

2. Voruntersuchungen und Auslegung ... 4

2.1. Katalysator-Untersuchung ... 4

2.2. Rapid-Prototyping-Modell ... 5

2.3. CFD-gestützte Anström-Entwicklung ... 7

3. Experimenteller Aufbau ... 10

3.1. Aufbau des Brenners mit integriertem Reformer ... 10

3.1.1. Brenner-Anströmung ... 13
3.1.2. Brenner-Katalysator ... 14
3.1.3. Reformer-Konstruktion ... 15

3.2. Prüfstandsaufbau mit Messtechnik ... 17

3.2.1. Hotbox ... 20
3.2.2. Massflow-Controller ... 20
3.2.3. Wasserdampf-Erzeugung ... 21
3.2.4. Wärmetauscher ... 21
3.2.5. Elektrischer Erhitzer des Brenners ... 21
3.2.6. Elektrischer Erhitzer des Reformers ... 22
3.2.7. Temperaturmessung ... 22
3.2.8. Abgasanalyse ... 24

4. Erprobung ... 25

4.1. Verhalten der geordneten Packung ... 25

4.2. Instationäres Aufheizen ... 27

4.3. Stationäre Wärmeübertragung und Verbrennung ... 30

5. Mathematische Modellierung ... 31

6. Modellverifikation ... 36

6.1. Verlustmechanismus ... 38

6.2. Gegenstromwärmeübertragung ... 44

6.3. Verbrennung und Wärmeübertragung ... 54

7. Zusammenfassung und Ausblick ... 65

8. Literaturverzeichnis ... 66

9. Tabellen- und Abbildungsverzeichnis ... 67

1. Rahmenbedingungen

Innerhalb des Niedersächsischen Forschungsverbundprojektes „Autarkes, thermisch hochintegrierte SOFC-Brennstoffzellensystem kleiner Leistung auf Propan-Basis“ wurde im Labor für Angewandte Thermodynamik der Hochschule Osnabrück ein katalytischer Brenner entwickelt, der einen integrierten Reformer zur Wasserdampfreformierung von Propan in Sandwichbauweise enthält. Ziel des Forschungsvorhabens war die Entwicklung und Charakterisierung eines SOFC-Brennstoffellensystem mit einem Bauvolumen bis maximal 40l und einem Gesamtgewicht von 40kg. Mit einem elektrischen Wirkungsgrad des Gesamtsystems von 35% wurde eine elektrische Netto-Leistung von 300W_{el} angestrebt (angenommen wurde ein elektrischer Wirkungsgrad des SOFC-Stacks von 59% bei etwa 660W_{el}). Als Einstiegsmarkt wird die motorunabhängige Stromversorgung eines Camping-Mobils angesehen. Als Serienkomponente wurde der SOFC-Stack Mk200/ESC4 (30-Zeller) der Firma Staxera GmbH (jetzt sunfire GmbH) verwendet. Auf weitere Serien-Komponenten, abgesehen von Isolationsmaterialien sowie Sensorik und Aktorik, wurde innerhalb des Gesamtsystems verzichtet, so dass Wärmetauscher, AOG-Verdichter, Nachbrenner, Reformer, Gehäuseverspannung, Elektronik und die Steuerung/Regelung eigenen Forschungsvorhaben unterlagen.

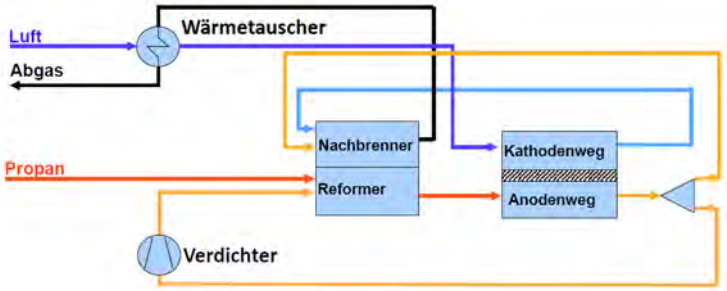


Abbildung 1-1: Fließbild des SOFC-Systems (Stationärbetrieb)

Um das Ziel des Forschungsprojekts zu erreichen, wurde eine thermisch hochintegrierte Bauweise angestrebt. Diese sieht vor, dass alle Komponenten, soweit möglich, planar (eben) ausgeführt werden. Dadurch können Systemkomponenten durch Stapelbauweise direkt aneinander gekoppelt werden, wodurch die Größe von thermisch verlustbehafteten geometrischen Flächen reduziert wird. Ein weiterer Vorteil liegt in der reduzierten Anzahl an Rohrverbindungen, die ebenfalls einen Verlustmechanismus des Gesamtsystems darstellen.

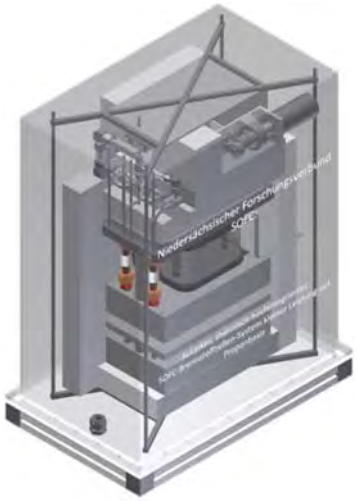


Abbildung 1-2: planare, thermisch hochintegrierte Bauweise des SOFC-Systems (3D-CAD-Darstellung)

		Volumenstrom $\left[\frac{l_N}{min}\right]$	Stoffmengenanteil [%]		Reaktionswärme [W]
instationär	Luft O_2	13,65	20,6		0
	Luft N_2	51,35	77,4		0
	H_2	2	2,93		~360
	C_3H_8	1,32	1,93		~2000
	Σ	**68,32**	**-**		**~2360**
stationär			bezogen auf		
			Brenngas	gesamt	
	Luft O_2	13,65	-	19,3	0
	Luft N_2	51,35	-	72,9	0
	H_2	0,69	12,39	0,89	~125
	CO	0,51	9,16	0,72	~107
	CO_2	1,88	33,75	2,66	0
	H_2O	2,49	44,7	3,53	0
	Σ	**70,57**	**-**	**-**	**~232**

Tabelle 1-1: Brennstoff-Zusammensetzung des Brenners (instationär und stationär)

Der innerhalb des Labors für Angewandte Thermodynamik entwickelte katalytische Nachbrenner erfüllt im Gesamtsystem die Funktion des instationären Pilot- bzw. Aufheizbrenners und auch die des stationären Nachbrenners. Im instationären Aufheizbetrieb (Tabelle 1-1) setzt der Brenner ein Propan-Wasserstoff-Luft-Gemisch um. Die Abgasleistung des Brenners wird durch einen nachgeschalteten Wärmetauscher in die Kathodenluft eingekoppelt, die den SOFC-Stack auf Betriebstemperatur aufheizt. Um eine kurze Aufheizzeit des SOFC-Systems zu realisieren, wird eine möglichst hohe Abgastemperatur bei maximalem Brenner-Volumenstrom und damit maximal konvektiver Abgasleistung angestrebt. Im stationären Betriebspunkt wird Wasserstoff und Kohlenmonoxid aus einem Teilvolumenstrom des AOGs im Brenner anhand der Kathodenabluft weiter verbrannt, so dass durch die exotherme Reaktion und dem konvektiven Wärmeeintrag der Kathodenabluft der Brenner eine Wärmequelle bezüglich des integrierten Reformers mit einer endotherm stattfindenden Dampfreformierung von Propan darstellt.

2. Voruntersuchungen und Auslegung

2.1. Katalysator-Untersuchung

Dem Labor für Angewandte Thermodynamik wurden zwei Katalysatoren mit unterschiedlichen Funktionen jedoch gleicher Triholed Rings-Geometrie zur Verfügung gestellt.

Abbildung 2-1: Katalysator in Triholed-Geometrie

Der Katalysator FCCB-ENV1 wurde laut Herstellerangaben für den Umsatz von Wasserstoff ab 30°C und CO ab 100°C hergestellt, der Katalysator FCCB2 soll laut Angabe des Herstellers den Umsatz von Propan ab einer Temperatur von 200°C sicherstellen. Alternative Hersteller von Katalysatoren bzw. zur katalytischen Beschichtung vorhandener Wabenkörper bzw. Schüttgüter wurden seitens des LATs angefragt, brachten jedoch lediglich Interesse an der Anwendung des Katalysators im Gesamtsystem.

Die Katalysator-Untersuchungen ergaben eine gute Aktivität des Katalysators FCCB-ENV1 hinsichtlich des Wasserstoff-Umsatzes. Bereits bei etwa 25°C konnte ein vollständiger Wasserstoff-Umsatz bis zu einem GHSV ($= \frac{\dot{V}_{Gas}}{V_{Reaktor.leer}}$) von ~120000 1/h festgestellt werden. Der Umsatz von Kohlenmonoxid konnte ab 100°C bei einem GHSV von ca. 3000 1/h bestätigt werden. Der Umsatz von Propan konnte auch bei hohen Temperaturen (>400°C) nicht festgestellt werden.

Der Katalysator FCCB2 zeigte einen kaum merklichen Umsatz von Wasserstoff und Kohlenmonoxid. Bei Temperaturen oberhalb von 250°C wurde ein beginnender Propan-Umsatz bei einem GHSV von etwa 4000 1/h festgestellt.

2.2. Rapid-Prototyping-Modell

Das Handling der zur Verfügung stehenden Katalysatoren sowie die damit zu erwartenden Druckverluste des katalytischen Brenners wurden im ersten Schritt über ein Rapid-Prototyping-Modell in Zusammenarbeit mit der Fa. Elster Kromschröder erprobt. Grundsätzlich lässt die Geometrie des Brennraums zwei Katalysator-Bestückungen zu: eine geordnete Packung oder eine stochastische Schüttung.

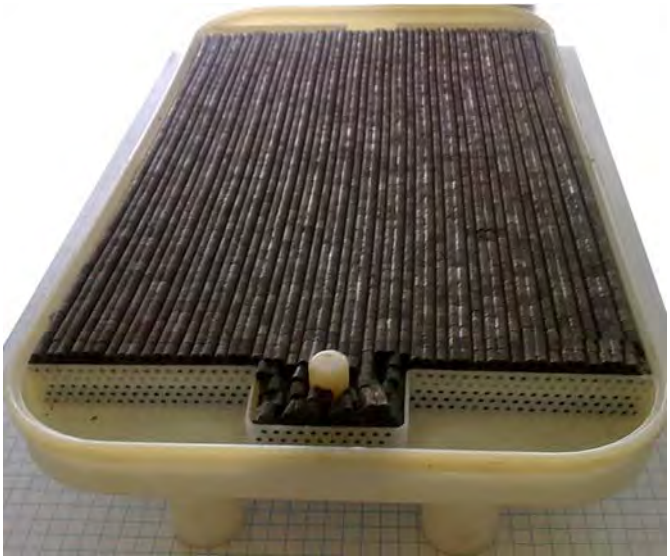


Abbildung 2-2: Rapid-Prototyping-Modell der Fa. Elster Kromschröder – links: geordnete Packung; rechts: zufällige Schüttung

Für die Erprobung der Druckverluste wurde ein Prüfstand in der Fa. Elster Kromschröder aufgebaut, der Volumenstrom-geführt den Differenzdruck der Katalysator-Packung zwischen Katalysator-Packung-Eintritt und -Austritt erfasst.

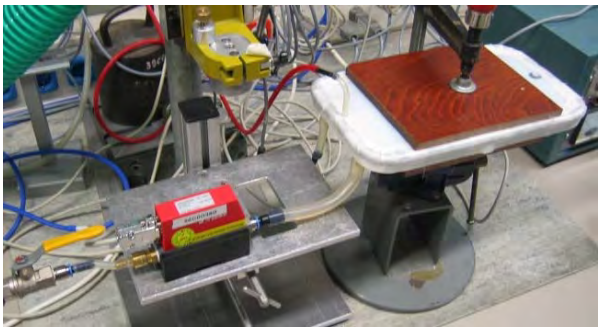


Abbildung 2-3: Prüfstand der Fa. Elster Kromschröder zur Ermittlung der Druckverluste

Der Differenzdruck wurde dabei bei Umgebungstemperaturen für das leere Brenner-Gehäuse, für die in Abbildung 2-2 gezeigte geordnete Packung sowie für die stochastische Schüttung ermittelt. Als Fluid wurde Luft ($\rho = 1{,}205\,\frac{kg}{m^3}$) aus dem Druckluft-Netz verwendet.

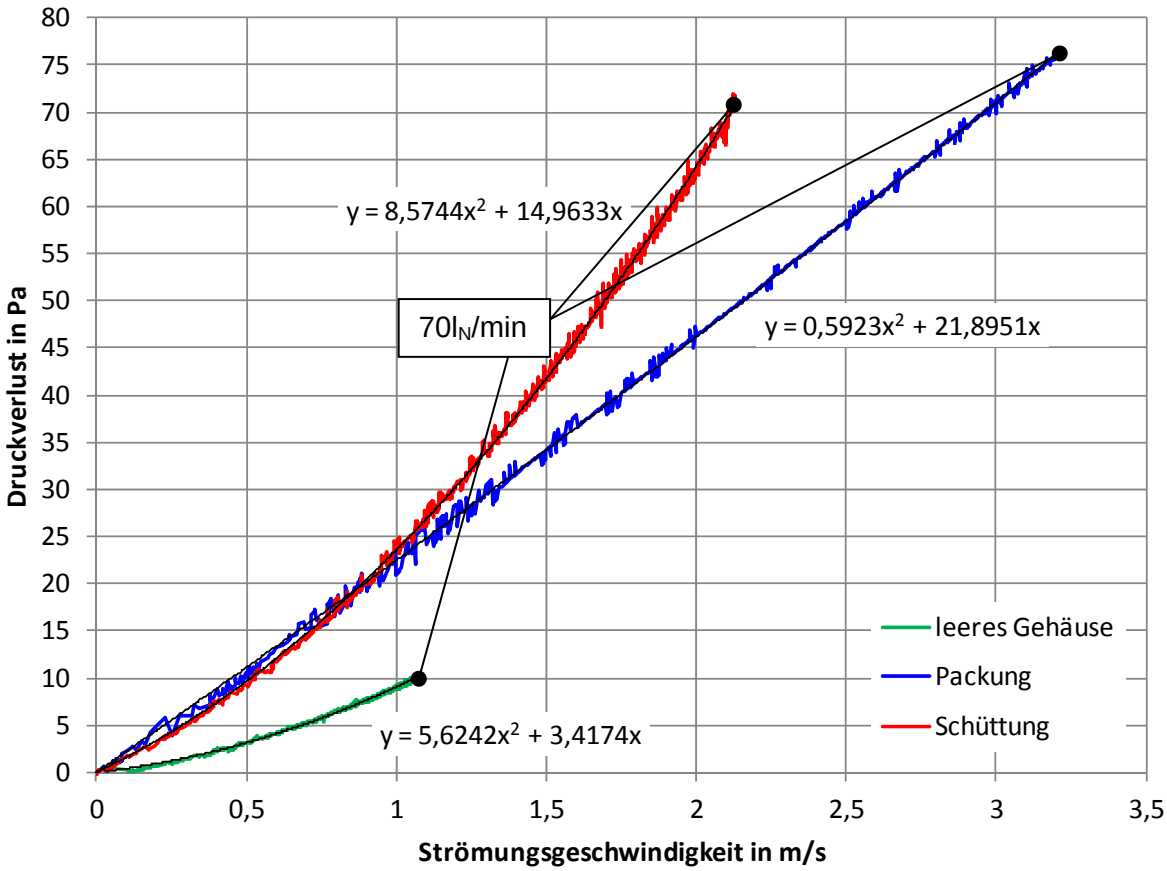


Abbildung 2-4: Ergebnisse der Druckverlust-Messungen

Da das Vorhandensein der Katalysator-Körper zu einer Abnahme des Freiraums führt, nimmt die Strömungsgeschwindigkeit antiproportional zum Freiraumanteil zu: $v = \frac{\dot{V}}{A \cdot \varepsilon}$ mit $\varepsilon = \frac{V_{Gas}}{V} = \frac{V - V_{Kat}}{V}$. Mit dem hier verwendeten Katalysator konnte für die ausgerichtete Packung ein Freiraumanteil von $\varepsilon_{Packung} \approx 0{,}337$, für die Schüttung von $\varepsilon_{Schüttung} \approx 0{,}497$ erzielt werden. Bei der Schüttung wurden entsprechend des höheren Freiraumanteils ca. 24% weniger Katalysator-Elemente verwendet.

Anhand der Ergebnisse der Druckverlust-Messungen wurden Widerstandsparameter eines quadratischen Druckverlust-Ansatzes $\Delta p = \varsigma \cdot \frac{\varrho}{2} \cdot v^2 + \frac{\eta \cdot l}{K} \cdot v$ nach Ergun bestimmt. Aus dem Vergleich der Koeffizienten zwischen dem quadratischen Druckverlust-Ansatz und den Messergebnissen konnten die Widerstandsparameter wie folgt bestimmt werden:

	ζ	K
Gehäuse (leer)	9,337	$1{,}265 \cdot 10^{-6} m^2$
Packung	0,983	$1{,}975 \cdot 10^{-7} m^2$
Schüttung	14,234	$2{,}89 \cdot 10^{-7} m^2$

Tabelle 2-1: experimentell ermittelte Widerstandsparameter

Für eine Abschätzung des Verhaltens der Druckverluste bei angestrebten hohen Betriebstemperaturen wurden die Stoffwerte Dichte sowie dynamische Viskosität an diesen Betriebszustand angepasst. Die Berechnung wurde auf den stationären Volumenstrom und die damit verbundene Strömungsgeschwindigkeit extrapoliert. Für den stationären Betriebspunkt (ca. $5{,}1 l_N/min$ AOG mit $70 l_N/min$ Luft) ergibt dies einen Volumenstrom von ca. $300 l/min$ bei rechnerisch 825°C.

Die Extrapolation der experimentell gewonnenen Druckverlust-Parameter (ohne Berücksichtigung des Einflusses von Verbrennung, Turbulenzen, etc.) auf diesen Betriebszustand zeigt sich hinsichtlich der Packung ein Druckverlust von 1,8mbar, hinsichtlich der Schüttung 2,7mbar zu erwartenden Druckverlusten, ohne dass weitere Gehäuse-Anschlüsse oder sonstige Einbauten berücksichtigt wurden.

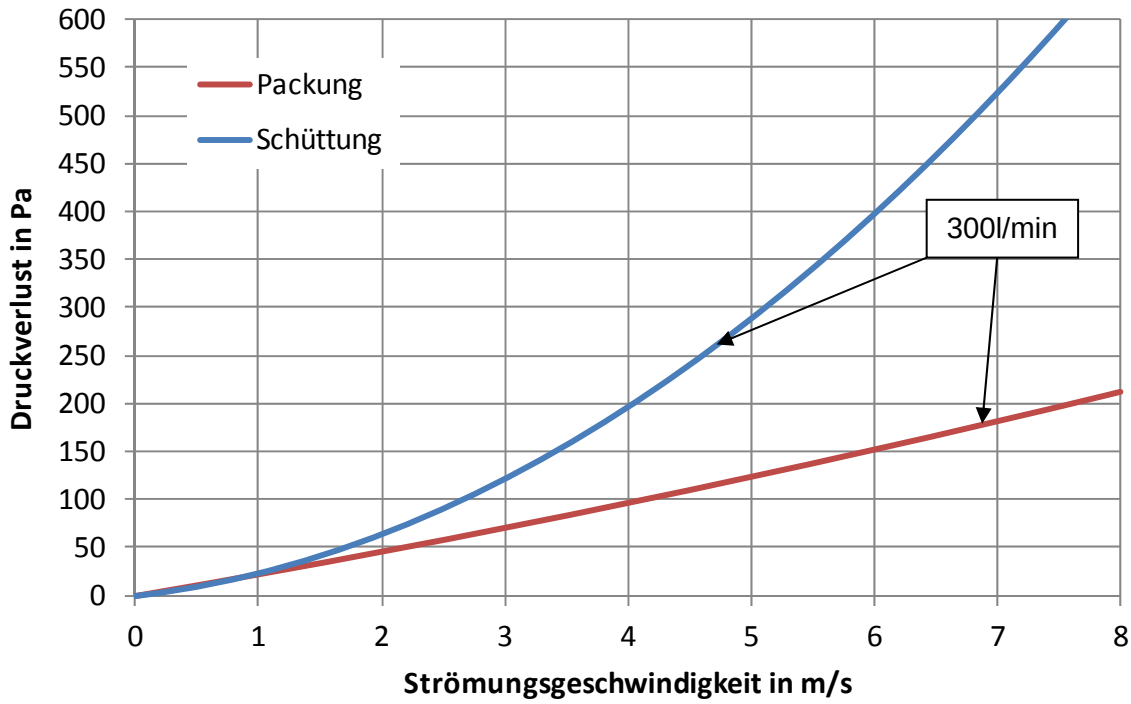


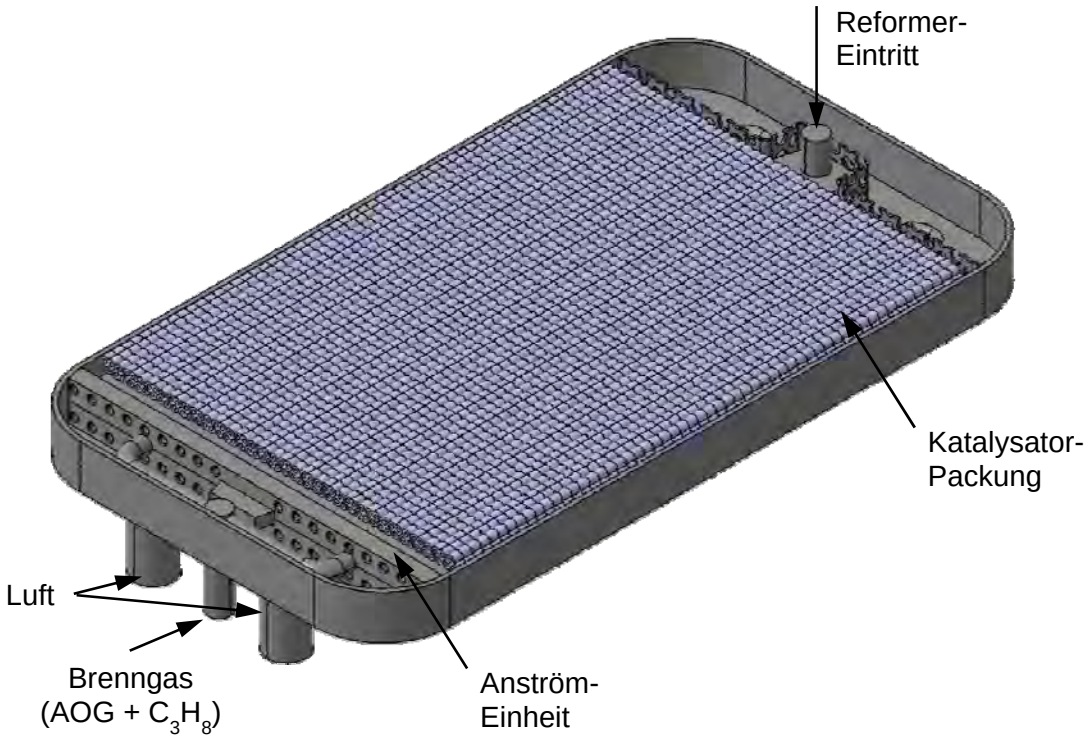
Abbildung 2-5: Extrapolation von Druckverlusten bei stationären Betriebsbedingungen (825°C, 5,2l_N/min AOG und 70l_N/min Luft)

2.3. CFD-gestützte Anström-Entwicklung

Die Entwicklung einer Anström-Situation des Brenners mit Luft und Brenngas geschah Simulations-gestützt unter Verwendung des CFD-Programms CFDesign der Firma Autodesk und wurde in Kooperation mit der Firma Elster Kromschröder durchgeführt. Die Katalysator-Packung wurde auf Grundlage der in „2.2. Rapid-Prototyping-Modell“ gezeigten experimentell ermittelten Widerstandsparameter modelliert, da eine detaillierte Nachbildung der Katalysatoren einen zu hohen Rechenaufwand mit sich brachte. Nicht implementiert ist ein Solver zur Lösung von homogenen bzw. heterogenen Reaktionen. Die Simulation ermöglicht es jedoch, mehrere Gasphasen zu integrieren, so dass ein Mi-

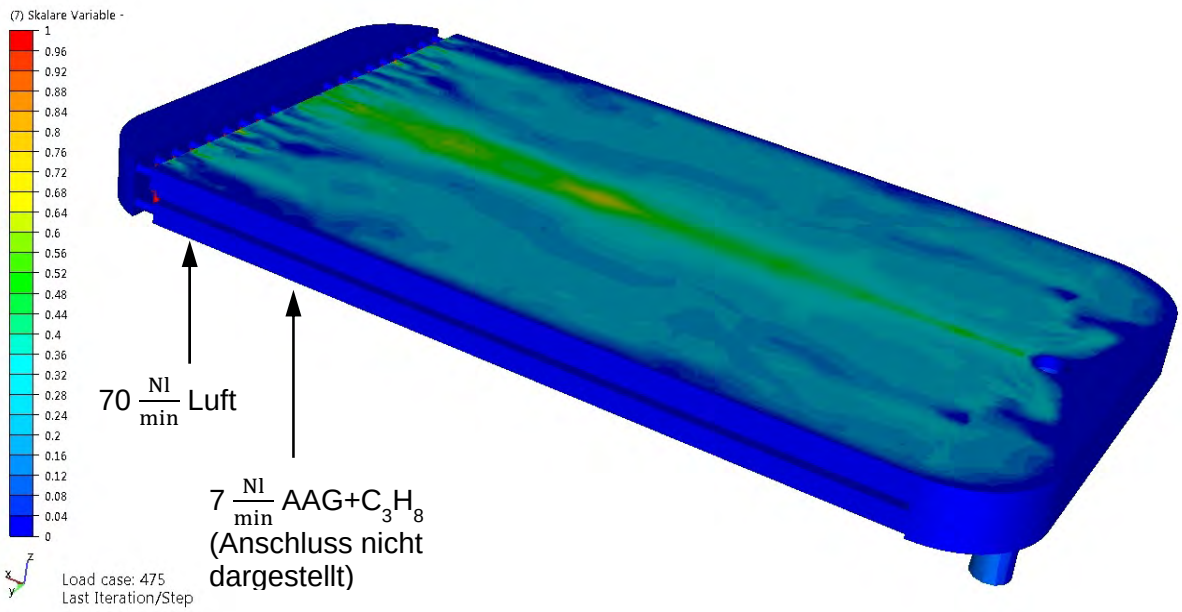
schungsbild auf das Brenngas-Luft-Gemisch innerhalb des Brennraumes zurückschließen lässt (die Darstellung erfolgt durch eine unterschiedliche Farbgebung).

Die während der Anfangsphase des Projekts verwendete Konstruktion des Brenners wurde zu Beginn der Projektarbeit des LAT hinsichtlich der Strömungskonfiguration hin simuliert. Die Konstruktion sah eine gemeinsame Einströmkammer von Brenngas (sowohl C_3H_8 als auch AOG) und Luft vor. Diese Einströmkammer war mittels Prallblech, dass mittig eine Öffnung als Gasführung und zur Aufnahme des Reformers besaß, von der katalytischen Packung getrennt. Die Simulation zeigte ein deutlich inhomogenes Brennstoff-Luft-Gemisch, so dass die Art der Anströmung Optimierungsbedarf aufzeigte um eine homogene Anströmung des Brenners zu gewährleisten. Zudem wurde bei der Entwicklung auf eine Sicherung gegen Flammenrückschlag geachtet.



Durch hohe Betriebstemperaturen auch im Bereich der Brennstoff- und Luftzuführung des Brenners wurde das Konzept einer nicht vorgemischten Brennstoffzuführung festgelegt. Diese hat den Vorteil, dass ein Flammenrückschlag in eine nicht vorhandene Vormischkammer ausgeschlossen wird. Die Brennstoff-/Luft-Zuführung wurde so gestaltet, dass diese direkt an der katalytischen Packung anliegt (Anström-Einheit). Eine vorzeitige Flammenbildung und die damit verbundene Gefahr der Rußbildung bei geringen Temperaturen kann so minimiert werden, sofern die Reaktionsgeschwindigkeit des Katalysators (d.h. hohes Umsatzverhalten) und der Stofftransport zum Katalysator groß genug gegenüber der Bildungsgeschwindigkeit von Ruß ist.

Die zuvor getrennten Zuführungen von C_3H_8 und AOG als Brenngas wurden zentral zusammengeführt.



Im Vergleich zu der vorherigen Konstruktion zeigt die Simulation eine deutlich homogenere Durchmischung von Brenngas und Luft der Brennerlagen (untere Brennerlage zeigt eine analoge Durchmischung).

3. Experimenteller Aufbau

Hinsichtlich der Entwicklung, Optimierung und Charakterisierung des Brenners wurde ein Prüfstand entwickelt, der die Betriebsbedingungen und Anforderung des Gesamtsystems hinsichtlich des Brenners nachbilden kann. Die Wasserdampfreformierung konnte aufgrund einer katalytisch nicht beschichteten Reformerfolie nicht dargestellt werden. Der Reformer erfüllt daher innerhalb des hier gezeigten Aufbaus die Funktion eines in den Brenner integrierten Wärmetauschers und wird im Gegenstrom mit Luft betrieben.

Dieses Kapitel zeigt den Aufbau des Brenners und des integrierten Reformers sowie die Implementierung des Brenner-Reformer-Systems in einen Prüfstand, der SOFC-System-Eigenschaften hinsichtlich Temperatur und Stoffzusammensetzung nachbilden kann und die Charakterisierung des Brenners ermöglicht.

3.1. Aufbau des Brenners mit integriertem Reformer

Wie Eingangs des Kapitels dargestellt, zeigt der Brenner eine planare Geometrie, dessen Außen-Abmessungen durch das SOFC-System auf 308mm x 168mm x 19,5mm festgelegt sind.

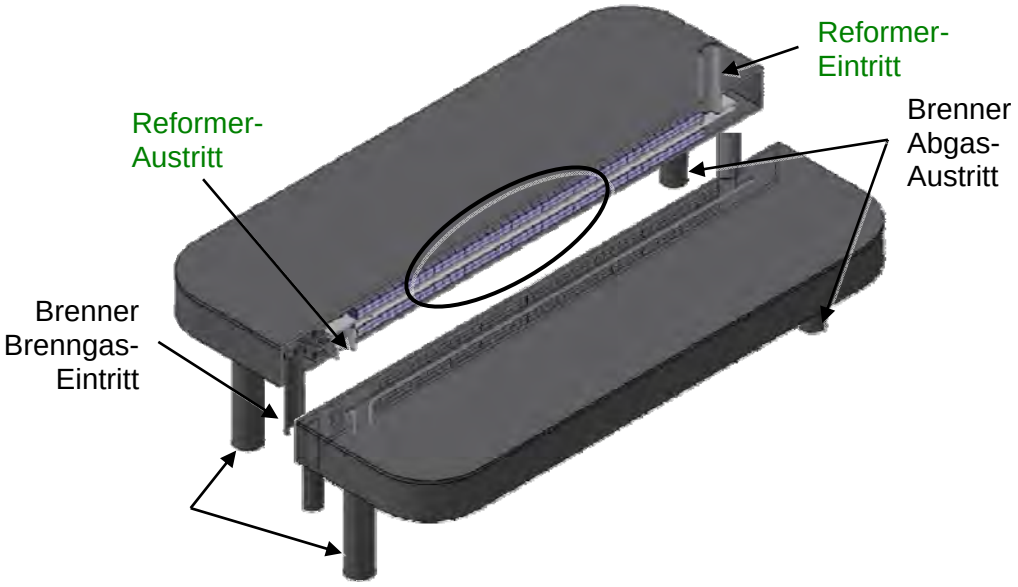


Abbildung 3-1: 3D-CAD-Schnittdarstellung des Nachbrenners mit integriertem Reformer

Abbildung 3-1 zeigt den in das Gesamtsystem des Forschungsprojekts eingesetzten Brenner mit integriertem Reformer als 3D-CAD-Konstruktion.

Für den instationären Betrieb wird dem Brenner ein Brennstoff-Luft-Gemisch, laut Tabelle 1-1, zugeführt, der diesen katalytisch verbrennt und die nachgeschalteten System-Komponenten aufheizt. Der Reformer wird in diesem Betriebspunkt nicht durchströmt und bildet daher nur eine passive Wärmesenke als thermisch zu erwärmende Masse.

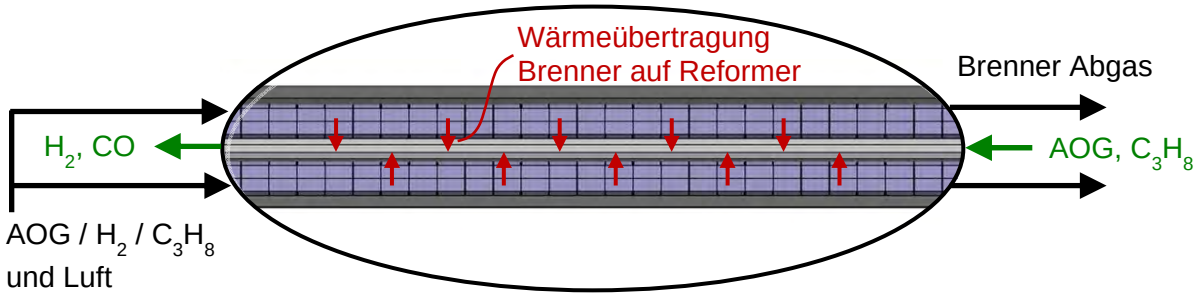


Abbildung 3-2: CAD-Schnittdarstellung des Brenners mit integriertem Reformer

Im stationären Betrieb werden Brenner und Reformer im Gegenstrom durchströmt. Sowohl Brenner als auch Reformer erhalten den halben AOG-Strom der SOFC, dessen Anteile ebenfalls in Tabelle 1-1 dargestellt sind. Zusätzlich zum AOG wird dem Brenner die Abluft der Kathode zugeführt, so dass die brennbaren Abgase des AOGs (H_2 und CO) nachverbrannt werden. Die dabei entstehende Reaktionswärme sowie die durch die Kathodenabluft in den Brenner eingeleitete konvektive Leistung wird dazu genutzt, den integrierten Reformer mit Wärme zu versorgen. Dieser erhält neben des AOGs zusätzlich Propan und reformiert diesen katalytisch anhand einer endothermen Dampfreformierung auf Basis des hohen Wasseranteils des AOGs.

Das Forschungsprojekt sah generell einen den Reformer umgebenen Brennraum und damit eine Brennerkonstruktion mit geteilter, zweilagiger Brennkammer vor (Abbildung 3-2), um eine möglichst hohe Wärmeeinkopplung durch Wärmeübertragung vom Brenner auf den Reformer zu erzielen und eine Rußbildung innerhalb des Reformers zu vermeiden, die bei Kühlung des Dampfreformierungsprozesses entstehen kann.

Die Fertigung des Brenners wurde für das SOFC-System als Gesamt-Laserkonstruktion ausgeführt. Das Brenner-Gehäuse wurde dauerhaft umlaufend verschweißt, so konnte die Gasdichtigkeit des Brenners sichergestellt werden. Eine Erprobung des Brenners im Labor für Angewandte Thermodynamik als Laserkonstruktion ist jedoch nicht zielführend, da das Öffnen des Brenners nach dessen Erprobung nicht zerstörungsfrei möglich ist.

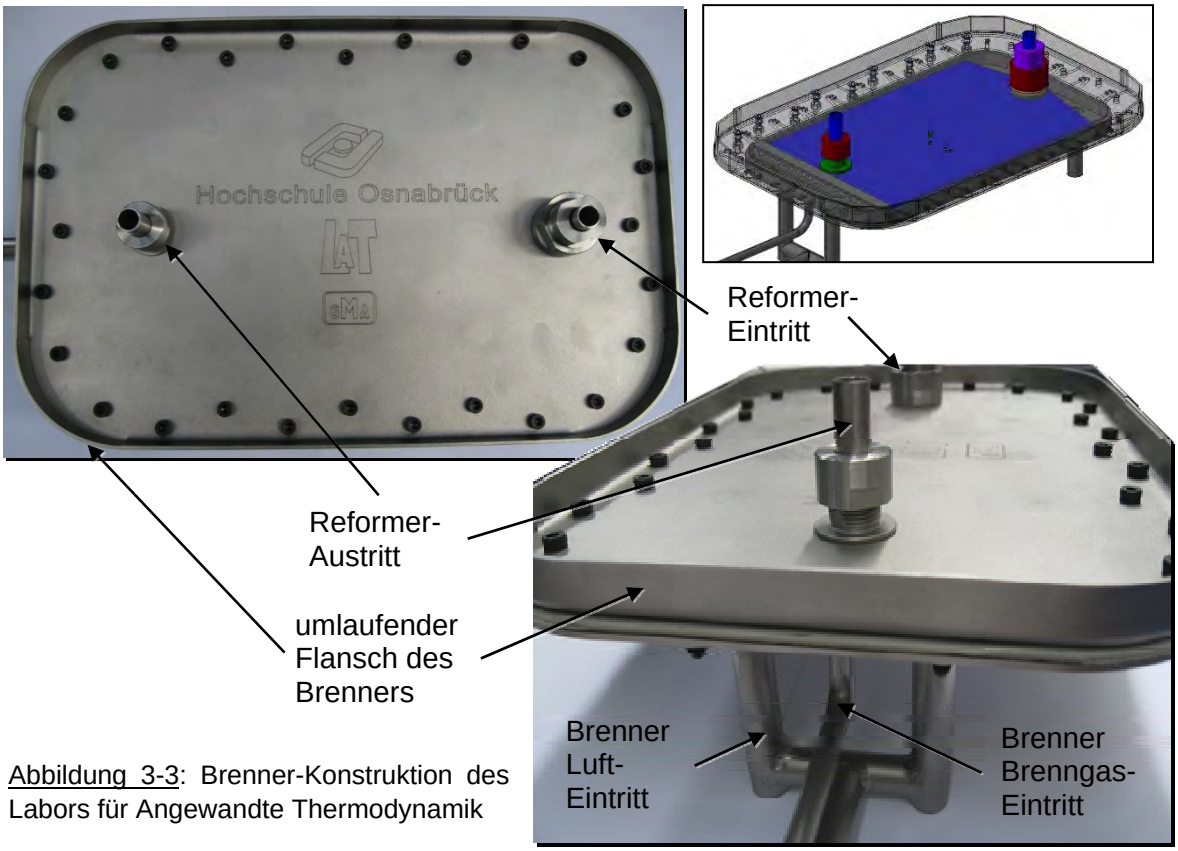


Abbildung 3-3: Brenner-Konstruktion des Labors für Angewandte Thermodynamik

Um eine zerstörungsfreie Untersuchung des Brenners zu ermöglichen, wurde auf eine Flanschkonstruktion des Brenners, für die Charakterisierung innerhalb des Prüfstands, zurückgegriffen.

Die Entwicklung einer kombinierten Los-/Festlagerung des Reformers im Brenner ermöglichte eine konstruktiv lösbare Durchführung der Reformer-Rohranschlüsse durch das Gehäuse des Brenners. Mit der Verwendung einer hochtemperaturbeständigen Dichtung aus Isoplan® 1100 konnte eine lösbare und gasdichte Konstruktion des Brenners realisiert werden. Die Loslagerung am Reformer-Eintritt ermöglichte eine Kompensierung thermischer Spannungen zwischen Brenner- und Reformer-Gehäuse, hervorgerufen durch Temperaturunterschiede der Komponenten-Gehäuse.

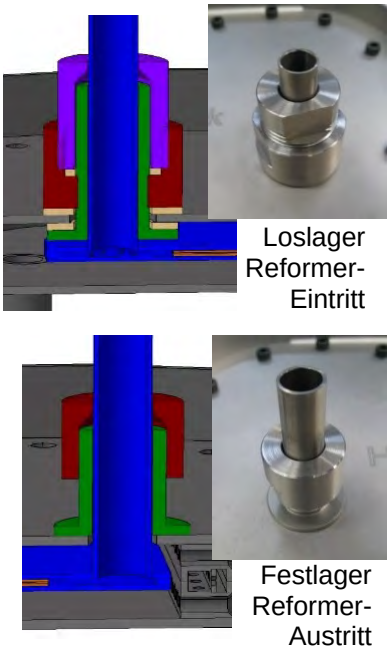


Abbildung 3-4: Fest- und Loslagerung des Reformers im Brenner-Gehäuse

Der Einsatz des Brenners und Reformers bei Temperaturen über 850°C macht die Verwendung entsprechender hochtemperaturfester Werkstoffe notwendig. Seitens der ThyssenKrupp AG wurde die eingesetzte hochtemperaturfeste austenitische und korrosionsbeständige Eisen-Chrom-Nickel-Legierung mit der hauseigenen Bezeichnung Nicrofer® 3220H – alloy

800H (1.4876) vorgeschlagen, die besonders im Betrieb chemischer Reaktoren unter hoher Temperatur und oxidierender Atmosphäre eine gute Dauerfestigkeit aufzeigt.

Die Besonderheit der Brenner-Konstruktion liegt in der planaren, zweilagen und katalytischen Brennkammer-Ausführung mit integriertem Reformer. Dies brachte vor allem die Entwicklung einer geeigneten, den Brennraum angepassten Anströmsituation des Brenners mit sich, auf dessen Konstruktive Umsetzung an dieser Stelle eingegangen werden soll.

3.1.1. Brenner-Anströmung

Besonders durch die vorgegebene geometrisch planare Bauweise des Brenners und des integrierten Reformers ist eine homogene Anströmung der Komponenten bezüglich ihrer Breite von besonderer Bedeutung. Bei inhomogener Anströmung des Brenners mit Brenngas und Luft kann dies zu lokaler Unterstöchiometrie und der damit verbundenen unvollkommenen Verbrennung oder zur Bildung lokaler Hotspots führen, die bei Nichterkennung zu Schädigungen oder auch zur Zerstörung des Brenners und der in den Brenner integrierten Komponenten führen kann. Zudem zeigt sich bei einer inhomogenen Anströmung eine nicht ideale Wärmetönung von Brenner und Reformer, die zu einem reduzierten Wärmeübertragungs-Mechanismus führt.

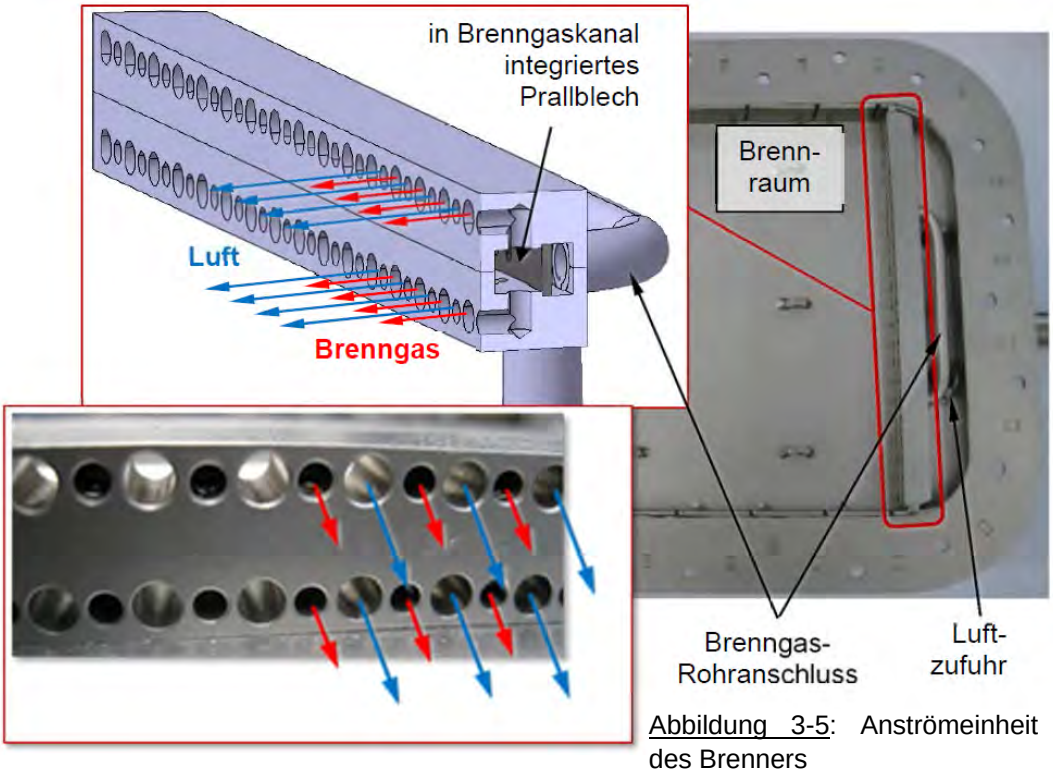


Abbildung 3-5: Anströmeinheit des Brenners

Aus diesem Grund wurde innerhalb des Forschungsprojektes eine Anströmsituation des Brenners in Form einer Anströmeinheit mittels kommerzieller CFD-Berechnungssoftware entwickelt, die diese Problematik verhindern soll. Die Entwicklung sieht einen in die Anströmeinheit integrierte Brenngaskanal und ein in den Brenngaskanal implementiertes Prallblech vor. Das durch einen zentralen Brenngas-Rohranschluss zugeführte Brenngas

soll anhand des Prallblechs innerhalb des Brenngaskanals so umgelenkt werden, dass er zu einer der Brenner-Breite entsprechenden gleichmäßigen Anströmung des Brennraums führt. Die Luftversorgung des Brennraums wird anhand von Durchgangsbohrungen in der Anströmeinheit realisiert, die die in Strömungsrichtung gesehen rückwärtig der Anströmeinheit gelegene Luftzufuhr auf eine maximal mögliche Breite des Brenners verteilen soll. Durch diese Art der Konstruktion findet keine Vormischung von Brenngas und Luft vor Eintritt in den Brennraum statt, so dass ein zündfähiges Brenngas-Luft-Gemisch erst innerhalb des Brennraums erzeugt wird.

Durch die horizontal symmetrische Konstruktion der Anströmeinheit wurde eine gleichmäßige Verteilung von Brenngas und Luft auf die obere und untere Brennerlage angestrebt.

3.1.2. Brenner-Katalysator

Die Katalysator-Schüttung des Brenners wird durch Lochbleche im Bereich des Brenner-Eintritts und -Austritts begrenzt, die die Schüttung örtlich fixiert. Zwischen Katalysator-Schüttung und Anströmeinheit des Brenners (Anströmraum der Katalysator-Schüttung) wird der Brennraum nicht mit einer Katalysator-Schüttung versehen.

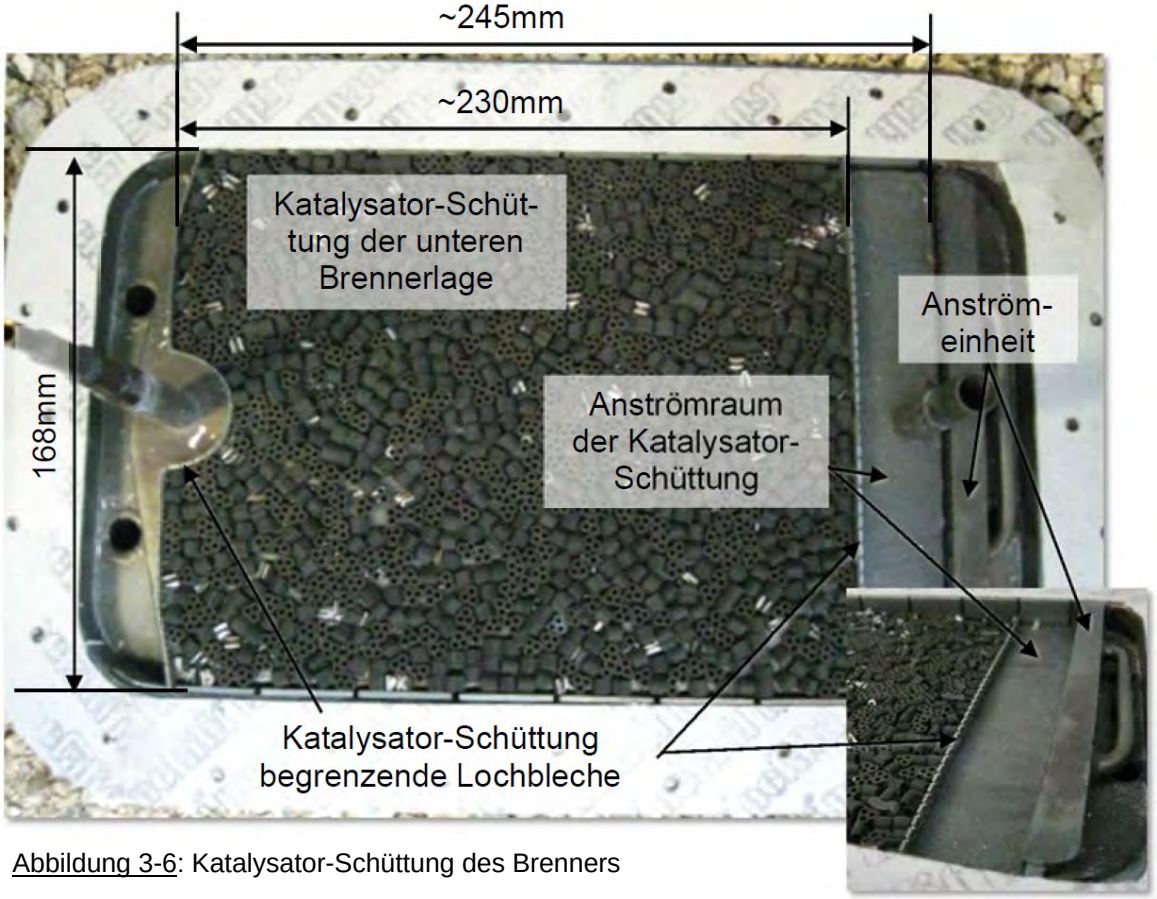


Abbildung 3-6: Katalysator-Schüttung des Brenners

Dadurch wird sichergestellt, dass die Anströmsituation des Brennraums nicht von Katalysatoren gestört wird, indem sie die Brenngas- und Luft-Bohrungen der Anströmeinheit verdecken.

Die Katalysator-Schüttung liegt in einer einzelnen Schicht von Katalysatoren vor und füllt einen Leerraum des Brenners von etwa 230mm x 168mm x 6mm pro Brennerlage aus. In beiden katalytischen Brennräumen befinden sich etwa $n_B^{Kat} = 2080$ Katalysatoren.

3.1.3. Reformer-Konstruktion

Die Entwicklung und Charakterisierung des in den Brenner integrierten Reformers unterlag dem Forschungsvorhaben eines Projektpartners. Es wurde ein Gehäuse mit 1mm Wandstärke vorgesehen, in das die Folienpackung (auch als Reformer-Katalysator in dieser Arbeit bezeichnet) mit 1,5mm Höhe integriert wurde. Die dem Labor für Angewandte Thermodynamik zur Verfügung stehende nicht beschichtete Folienpackung wurde entsprechend der geometrischen Vorgabe des Projektpartners in das Gehäuse integriert. Die Gasdichtigkeit des Reformers ist hierbei von äußerster Wichtigkeit. Sollte eine Undichtigkeit auftreten, käme es zu Verlustströmungen des Brenners oder des Reformers, je nach lokaler Druckdifferenz der Komponenten, die hinsichtlich des Gesamtsystems zu einem Totalausfall führen können. Der Zusammenbau von Reformer-Gehäuse und Folienpackung wurde anhand eines umlaufenden Rahmens mit der Höhe der Folienpackung von 1,5mm sichergestellt. Zusammen mit der Gehäuseober- und -unterseite konnte im Zusammenbau eine umlaufende Schweißnaht gelegt werden, die die Gasdichtigkeit sichergestellt.

Die Reformerfolie hat eine Länge von 200mm. Der Anschlussabstand der Reformer-Rohranbindungen beträgt 240mm, so dass die Folie lediglich 20mm Abstand zum Ein- bzw. Austritt des Gehäuses aufweist. Mit einer Breite der Reformer-Folie von etwa 160mm zeigt sie nur einen minimalen Abstand ($< 1mm$) zum umlaufenden Gehäuse-Rahmen, so dass das Reformiergas bzw. hinsichtlich der Charakterisierung innerhalb dieser Arbeit der Luftvolumenstrom des Reformers nur eine Strömung durch die Folienpackung ausbilden kann.

Durch 1mm starke Gehäuseober- und -unterseite sowie einer 1,5mm hohen Reformerfolie ergibt dies eine Gehäuse-Höhe des Reformers von 3,5mm.

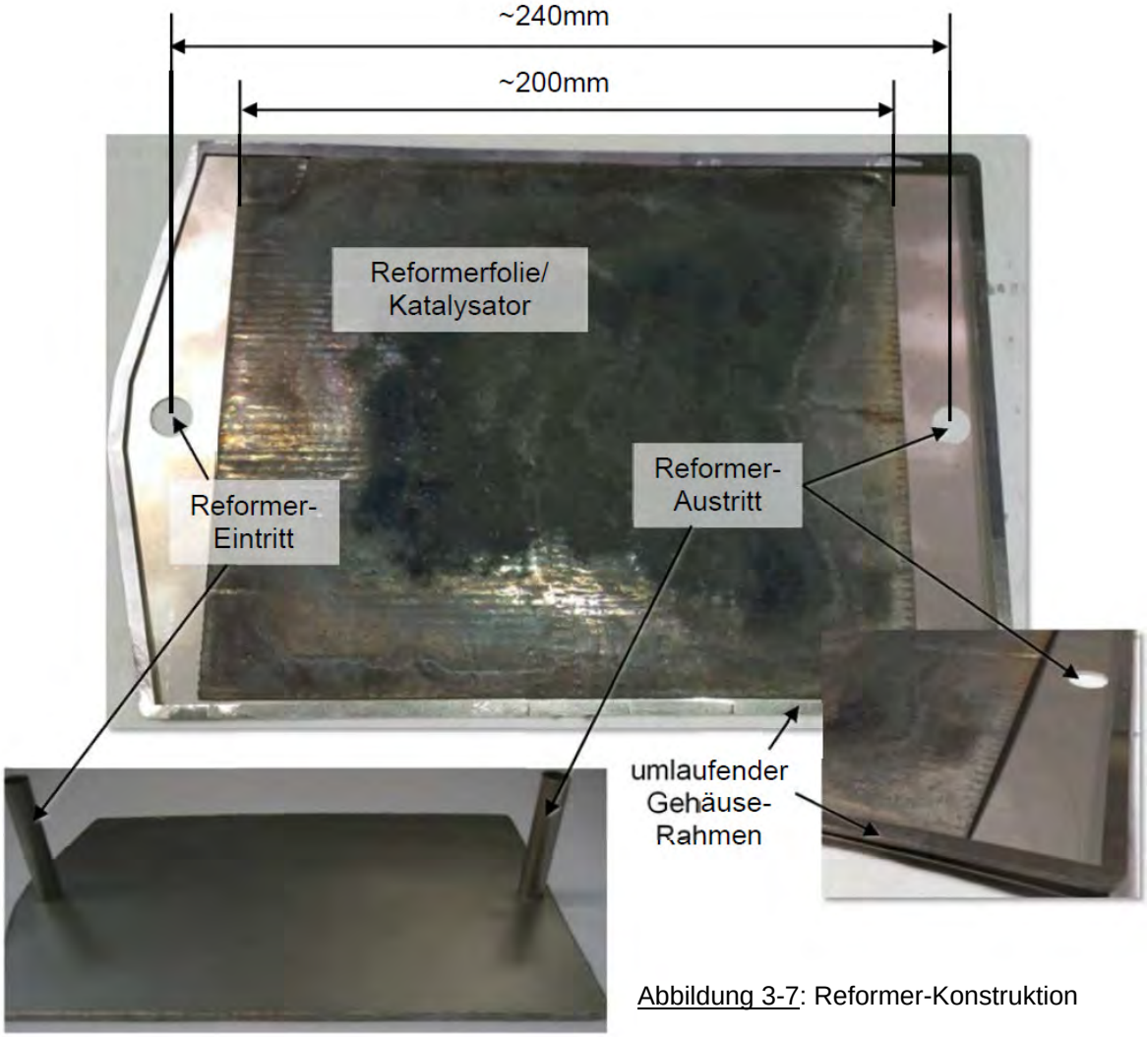


Abbildung 3-7: Reformer-Konstruktion

3.2. Prüfstandsaufbau mit Messtechnik

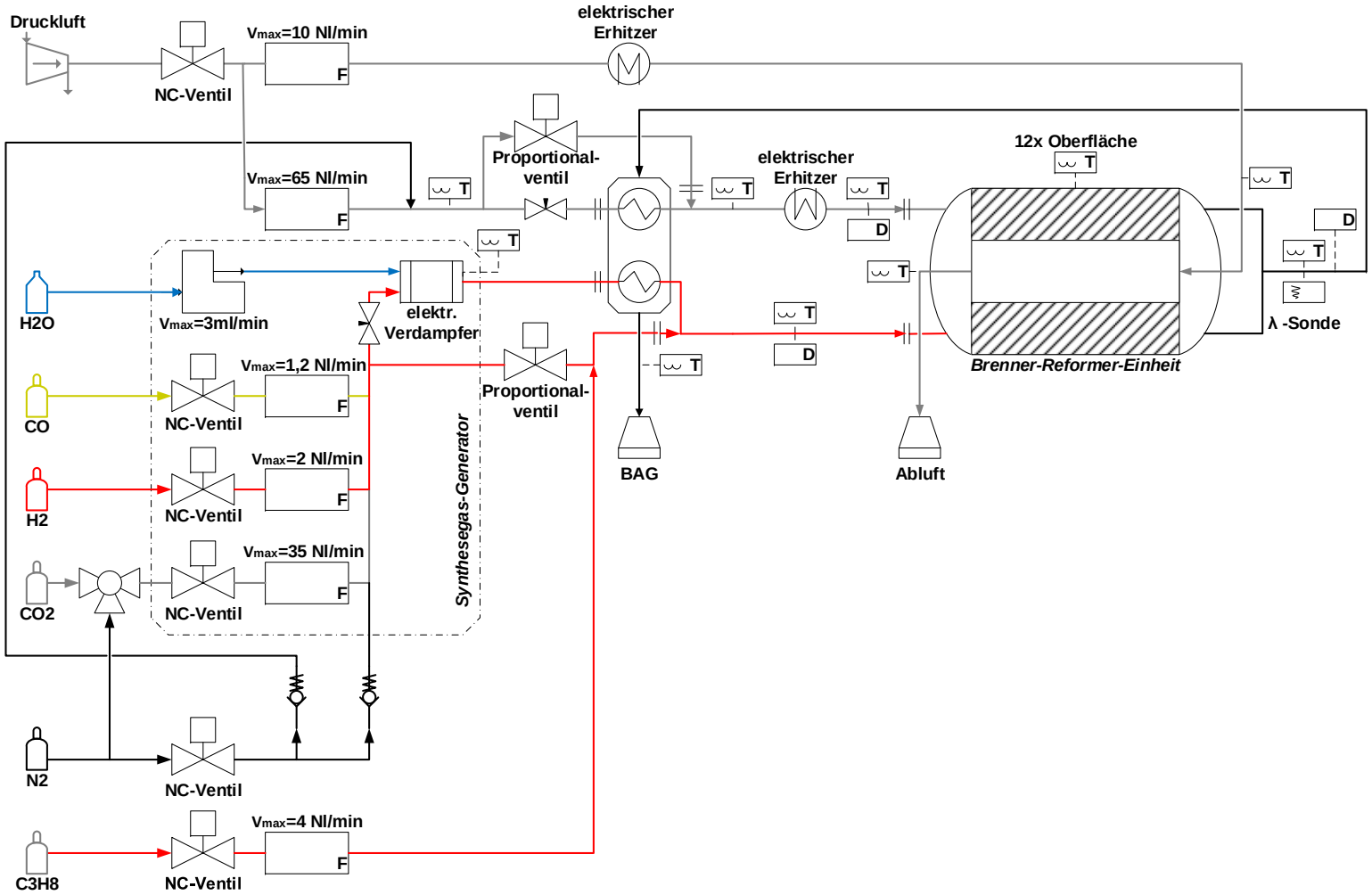


Abbildung 3-8: Fließbild sowie Sensoren und Aktoren des Prüfstandes

Abbildung 3-8 zeigt das Fließbild des Prüfstands sowie die innerhalb des Prüfstands vorhandenen Sensoren und Aktoren.

Anhand des Prüfstands konnten sowohl instationäre als auch stationäre Systembedingungen des SOFC-Systems nachgebildet werden, um den Brenner hinsichtlich seines Betriebsverhaltens zu charakterisieren.

Der in Abbildung 3-8 gezeigte Synthesegas-Generator besteht aus unterschiedlichen MFC („3.2.2. Massflow-Controller“), die in Verbindung mit einer Membranpumpe und einem elektrischen Verdampfer („3.2.3. Wasserdampf-Erzeugung“) ein synthetisches Gasgemisch innerhalb des Prüfstands erzeugen. Dadurch konnte das in Tabelle 1-1 dargestellte AOG synthetisch erzeugt und dem Brenner zugeführt werden.

Für den instationären Aufheizbetrieb des Gesamtsystems wird Wasserstoff-Propan-Luft-Gemisch innerhalb des Brenners umgesetzt, so dass ein weiterer MFC für Propan verwendet wurde, der den Propan-Volumenstrom direkt in den Brenner leitet.

Das Brenner-Abgas wird in einen nachgeschalteten Wärmetauscher geleitet („3.2.4. Wärmetauscher“) und erwärmt sowohl die dem Brenner zugeführte Luft als auch das generierte Synthesegas. Für eine weitere Temperaturerhöhung am Brenner-Eintritt wurde eine elektrische Heizpatrone eingesetzt („3.2.5. Elektrischer Erhitzer des Brenner“), die die Brenner-Luft vor Eintritt in den Brenner bis maximal 700°C erhitzt.

Die dem Reformer zugeführte Luft kann anhand einer weiteren elektrischen Vorheizstrecke („3.2.6. Elektrischer Erhitzer des Reformer“) auf maximal 350°C erhitzt werden.

Die zu bilanzierenden Komponenten besitzen unmittelbar an ihren Rohranbindungen am Eintritt und Austritt Temperaturmessstellen. Neben dieser Temperaturmessung werden Oberflächentemperaturen des Brenners ermittelt, um so Aussage über die örtliche Wärmetönung innerhalb des Brenners zu erhalten („3.2.7. Temperaturmessung“).

Für die Datenerfassung und Prüfstandssteuerung bzw. -regelung wird ein CompactDAQ-System von National Instruments verwendet, auf das per PC mittels Diadem zugegriffen wird.

Der Brenner mit integriertem Reformer wird in einer Hotbox betrieben, um so eine geeignete Isolations-Situation zu schaffen und um das Gefahrenpotential, besonders im Betriebsbereich hoher Temperaturen, zu minimieren („3.2.1. Hotbox“).

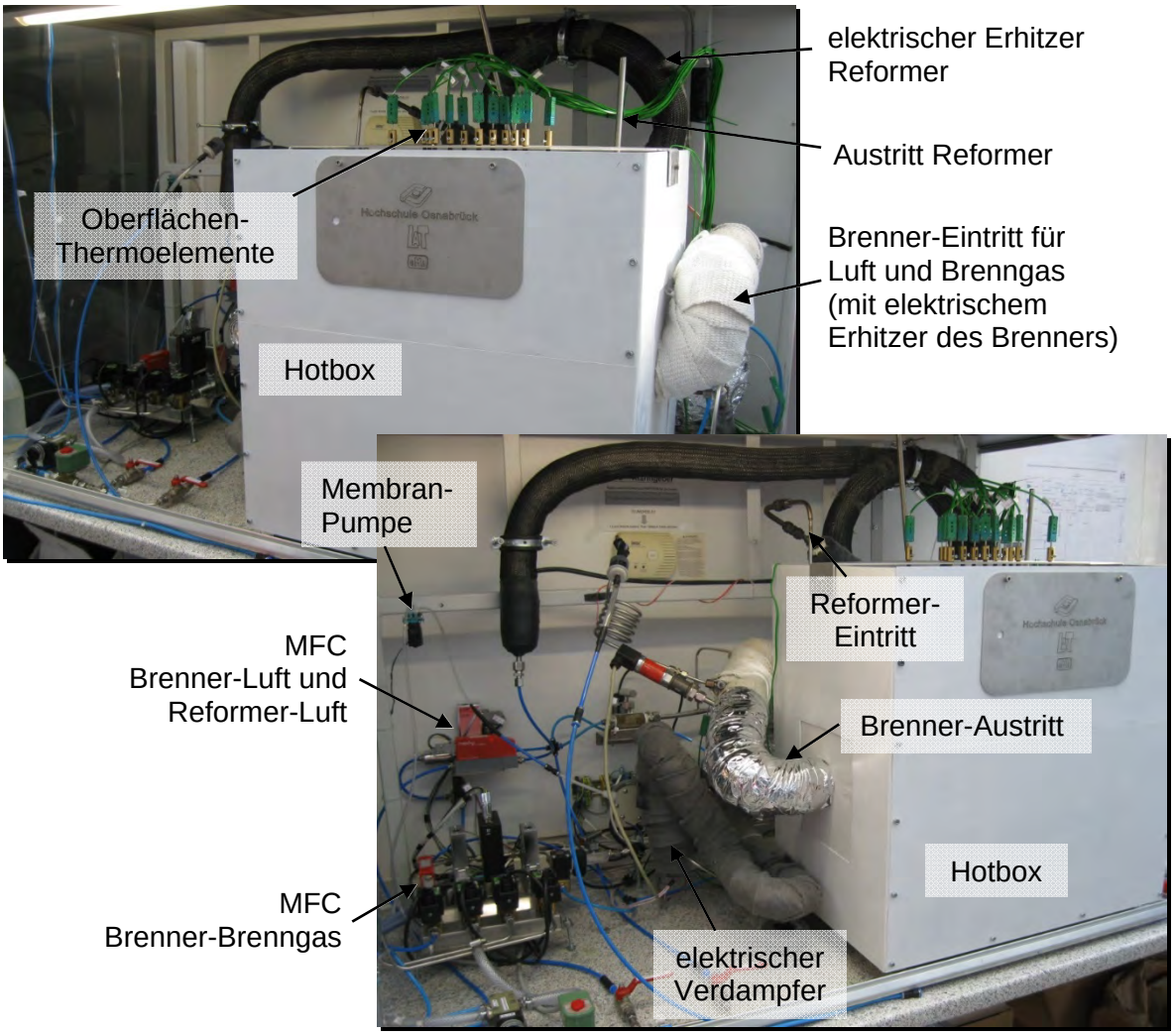


Abbildung 3-9: Brenner-Prüfstand

Die wesentlichen Komponenten des Prüfstandes sowie Sensoren und Aktoren werden im weiteren Verlauf dargestellt.

3.2.1. Hotbox

Der Bereich der Hochtemperaturtechnik erfordert eine geeignete Isolation der Hochtemperatur-Komponenten, hier speziell des entwickelten Brenners. Hierzu wurde der Brenner mit dem integrierten Reformer in einer Hotbox installiert. Als Isolation wurde eine Schüttung aus Vermiculite, aufgrund seiner thermischen Stabilität bis etwa 950°C, mit einer Schütthöhe von etwa 0,3m oberhalb und unterhalb des Brenners verwendet. Zudem ist die Verarbeitung und Verwendung von Vermiculite unter dem gesundheitlichen Gefahren-Aspekt unkritisch.

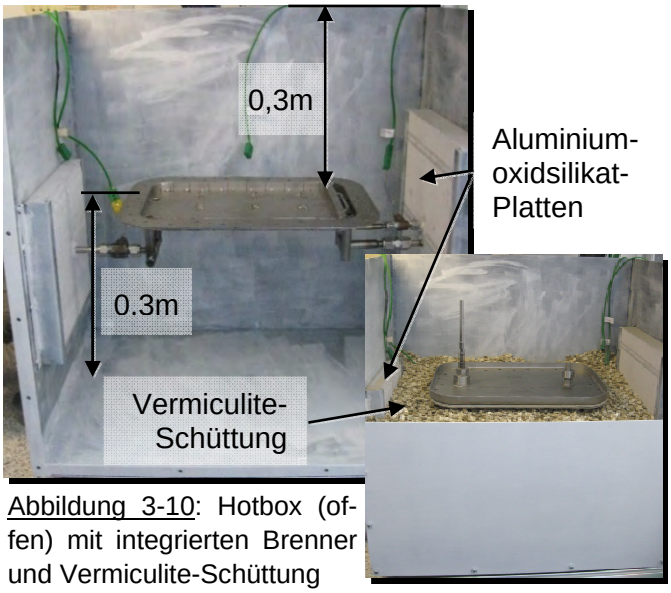


Abbildung 3-10: Hotbox (offen) mit integrierten Brenner und Vermiculite-Schüttung

3.2.2. Massflow-Controller

Um eine exakte Charakterisierung des Brenners und Reformers hinsichtlich der Stoffmengenzusammensetzung und Stoffströme zu gewährleisten, ist eine genaue und stabile Dosierung der Gasvolumenströme entscheidend. Aus diesem Grund wurden für die Dosierung der Volumenströme MFC innerhalb des Prüfstandes verwendet.

Innerhalb des Prüfstandes wurden sechs MFC von insgesamt drei Firmen entsprechend der zu erwartenden Gaszusammensetzung eingesetzt (Tabelle 3-1).

	Hersteller	Arbeitsbereich	Fehler
$Luft_{Reformer}$	Vögtlin Instruments AG	$0{,}3 \dots 10\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 1{,}5\% \cdot \dot{V}_{max} = \pm 0{,}15\,\frac{l_N}{min}$
$Luft_{Brenner}$	Bronkhorst High-Tech BV	$1{,}3 \dots 65\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}1\% \cdot \dot{V}_{max} = \pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}065\,\frac{l_N}{min}$
H_2	MKS Instruments, Inc.	$0{,}04 \dots 2\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 1\% \cdot \dot{V}$
CO	Bronkhorst High-Tech BV	$0{,}024 \dots 1{,}2\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}1\% \cdot \dot{V}_{max} = \pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}0012\,\frac{l_N}{min}$
CO_2	Bronkhorst High-Tech BV	$0{,}7 \dots 35\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}1\% \cdot \dot{V}_{max} = \pm 0{,}5\% \cdot \dot{V} \pm 0{,}004\,\frac{l_N}{min}$
C_3H_8	Vögtlin Instruments AG	$0{,}1 \dots 4\,\frac{l_N}{min}$	$\pm 1{,}5\% \cdot \dot{V}_{max} = \pm 0{,}06\,\frac{l_N}{min}$

Tabelle 3-1: verwendete MFC

3.2.3. Wasserdampf-Erzeugung

Abbildung 3-11: verwendete Membranpumpe

Der hohe Stoffmengenanteil von Wasserdampf innerhalb des Anoden-Abgases (44,7% in Brenngas) führt dazu, dass hierzu eine geeignete Fördermöglichkeit in den Prüfstand implementiert werden musste. Die direkte Dosierung eines Wasserdampf-Volumenstroms gestaltet sich in der Umsetzung als problematisch, da handelsübliche MFC im Temperaturbereich oberhalb von 100°C (der Wasserdampf müsste überhitzt vorliegen um ein Auskondensieren im MFC zu vermeiden) nicht vorhanden sind. Daher wurde die Dosierung eines flüssigen Wasservolumenstroms umgesetzt. Ein Wasserdampf-Volumenstrom von $2{,}49\,\frac{\boldsymbol{l_N}}{\boldsymbol{min}}$ (Tabelle 1-1) entspricht in diesem Zusammenhang einem Flüssigkeitsvolumenstrom an Wasser von etwa $2{,}004\,\frac{ml}{min}$. Die Dosierung wurde mit Hilfe einer Membranpumpe FMM 20 der Firma KNF Neuberger GmbH realisiert.

Der so erzeugte Wasservolumenstrom wird in einen vorgeschalteten Flüssigkeits-Pulsationsdämpfer eines elektrischen Verdampfers geleitet. Der Verdampfer besteht aus einer in das Verdampfergehäuse integrierten elektrischen Heizpatrone (ohmscher Heizwiderstand) mit einer elektrischen Leistung von etwa $P_{max} \approx 2{,}6kW$ (bei 230V_{ac}). Die Leistungsregelung des Verdampfers erfolgt anhand eines geregelten PWM-Signals, das ein Solid-State-Relais schaltet.

3.2.4. Wärmetauscher

Abbildung 3-12: 3D-CAD-Darstellung des Prüfstandswärmetauschers (rot: Abgasanschluss; blau: Brenngas-Anschluss; grau: Luftanschluss und Gehäuse)

Hohe Betriebstemperaturen des SOFC-Systems führen in der Nachbildung der Systembedingungen hinsichtlich des Brenners im Prüfstand zu einer notwendigen Vorwärmung der dem Brenner zugeführten Stoffströme auf über 700°C. Hierzu wurde in einer vorhergehenden Abschluss-Arbeit ein Prüfstandswärmetauscher ausgelegt und entwickelt, der sowohl das Synthesegas als auch die Luft ohne Vormischung vor Eintritt in den Brenner anhand des Brenner-Abgases vorwärmt. [1]

Der Wärmetauscher ist als Rohrbündelwärmetauscher mit Umlenkblechen ausgeführt. Neben den Anschlüssen für das Brenner-Abgas besitzt er getrennte Anschlüsse für die vorzuwärmende Brenner-Luft sowie das Synthesegas des Brenners. Neben der energetischen Nutzung des Brenner-Abgases hat die Verwendung des Wärmetauschers durch die Abkühlung der Brenner-Abgase einen sicherheitsrelevanten Aspekt in der Prüfstandsanwendung.

3.2.5. Elektrischer Erhitzer des Brenners

Während der experimentellen Charakterisierung des Prüfstandes wurde deutlich, dass eine Luft- und Brenngas-Vorwärmung am Brenner-Eintritt anhand des vorgeschalteten Wärmetauschers („3.2.4. Wärmetauscher“) durch Wärmerückgewinnung der heißen Brenner-Abgase lediglich bis ca. 350°C im Maximum erreicht werden konnte. Um hinsichtlich des SOFC-Systems realistische Eintrittstemperaturen nachstellen zu können, wurde innerhalb des Prüfstandes eine elektrische Heizpatrone zur Luft-Vorwärmung eingesetzt. Diese besteht aus einer eingehausten keramischen Hochleistungsheizpatrone der Firma Türk+Hillinger GmbH und besitzt eine elektrische Leistung von etwa 1,3kW$_{el}$ (bei 230V$_{ac}$), hervorgerufen durch einen ohmschen Widerstand von ca. 40Ω.

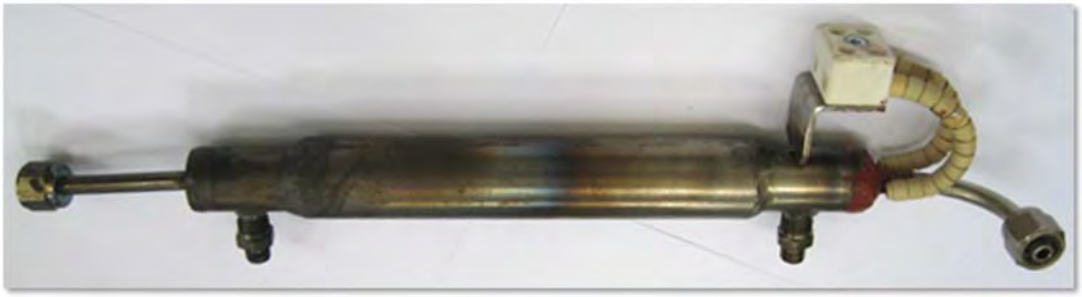


Abbildung 3-13: elektrische Heizpatrone (nach Verwendung bei 700°C Austrittstemperatur)

Die maximale Betriebstemperatur der Heizpatrone liegt bei 700°C. Für die Leistungsregelung und Bilanzierung wurden sowohl eintritts- als auch austrittsseitig Temperaturmessstellen eingebracht. Die Leistungsregelung der Heizpatrone erfolgt anhand eines Leistungs-Halbleiterrelais, das durch ein geregeltes PWM-Signal gepulst wird.

3.2.6. Elektrischer Erhitzer des Reformers

Neben der Brenner-seitigen Vorwärmung der zugeführten Stoffströme, ist auch eine Vorwärmung der Reformer-Luft durch die Verwendung eines elektrischen Heizschlauchs der Firma Hillesheim GmbH möglich. Dieser besitzt eine eigene Regelelektronik und ermöglicht, laut Herstellerangabe, eine Betriebstemperatur von bis zu 600°C bei einer elektrischen Leistung von ca. 1,4kW$_{el}$ (230V$_{ac}$).

Abbildung 3-14: Heizschlauch mit Regelelektronik der Firma Hillesheim GmbH

3.2.7. Temperaturmessung

Die Bilanzierung des Brenners und integrierten Reformers werden in dieser Arbeit maßgeblich anhand der Temperaturen der Komponenten vorgenommen. Daher ist die Temperaturmessung sowohl auf komponentennahe Thermoelemente am Eintritt und Austritt als auch auf Thermoelemente auf der Oberfläche des Brenner-Gehäuses gestützt.

Die in dem Prüfstand verwendeten Thermoelemente des Typs K besitzen die Toleranzklasse 2, so dass für die Temperaturmessung der Messfehler

$$\Delta T_{NiCrNi} = \begin{cases} \pm 2{,}5K \; für - 40°C \leq t \leq 333°C \\ 0{,}0075 \cdot (T - 273.15K) \; für \; t > 333°C \end{cases}$$

gilt.

Die verwendeten Widerstandsthermometer besitzen die Toleranzklasse B nach DIN EN 60751 und zeigen damit den folgenden Fehler in der Temperaturmessung:

$$\Delta T_{PT100} = \pm\left(0{,}3K + 0{,}005 \cdot (T - 273{,}15K)\right)$$

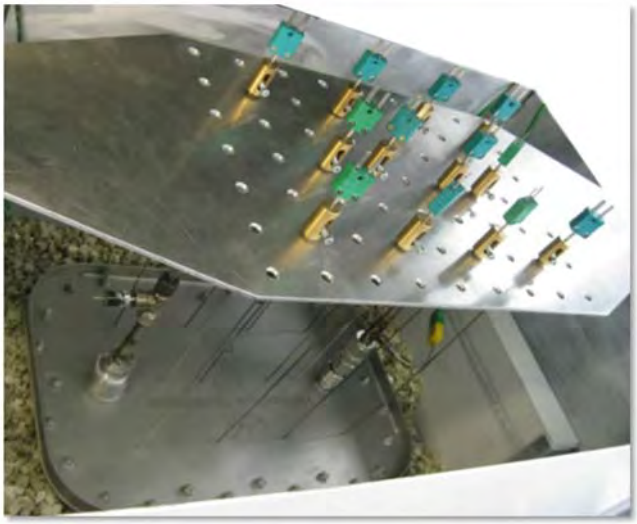


Abbildung 3-16: Oberflächentemperaturmessung mit Federmechanismus

Für die Messung der Oberflächentemperaturen wurden Federelemente aus Messing mit einem Federmechanismus entwickelt, die vorgespannt das Thermoelement auf die Oberfläche des Brenners pressen (Abbildung 3-16). Durch die seitliche Führung des Thermoelements in der Isolations-Schüttung wird die Vorspannkraft des Federmechanismus entlang des Thermoelements normal zur Brenner-Oberfläche geleitet. Thermische Dehnungen des Brenners werden damit kompensiert, so dass eine weiterhin genaue Messung der Oberflächentemperatur gewährleistet werde konnte. Für die Oberflächenmessung wurden insgesamt zwölf Thermoelemente verwendet, die nach Abbildung 3-17 angeordnet sind.

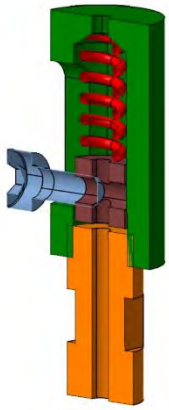


Abbildung 3-15: Druckfederelement

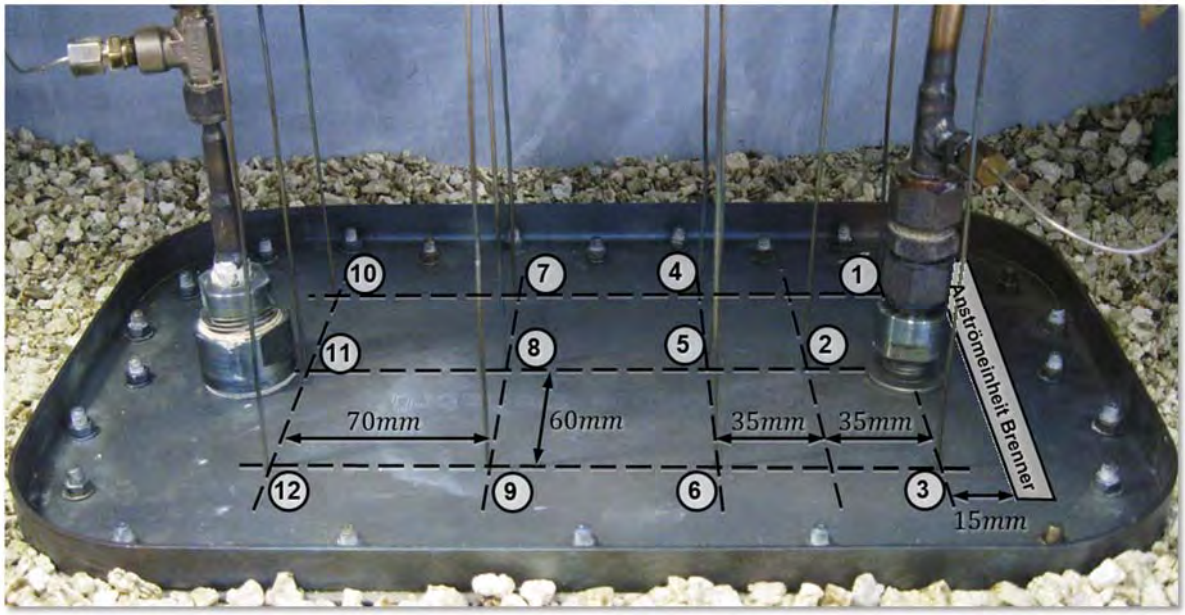


Abbildung 3-17: Brenner-Gehäuse mit projiziertem Raster der Oberflächentemperatur-Messstellen; zu beachten: Brenner-Eintritt ist hier rechts, abweichend zu nachfolgend dargestellten Simulationsergebnissen mit Anströmung links (180° um z-Achse gedrehte Ausrichtung)

Die Messung der anschlussseitigen Fluidtemperaturen erfolgt anhand Thermoelementen, die in die Kernströmung des Fluides eingebrachter sind. Hierzu wurden Rohrverschraubungen (T-Stücke) der Firma Swagelok GmbH verwendet, die ein direktes Einschrauben des Thermoelements in die Rohrverbindung ermöglichten.

3.2.8. Abgasanalyse

Das Brenner-Abgas wurde hinsichtlich der Komponenten H_2, C_3H_8, CO, CO_2, O_2, NO und NO_x mittels folgender Messtechnik analysiert:

Hersteller	Typ	Komponente	Messbereich
ABB	Flammenionisationsdetektor FID 14	C_3H_8	0 - 2000 ppm
	Easyline 1020	H_2	0 - 100 Vol.%
	URAS 14	CO	0 - 2000 ppm
		CO_2	0 - 25 Vol.%
		NO	0 - 1000 ppm
ECO Physics	NO/NOx Analysator CLD 70 S	NO	0 - 1000 ppm
		NO_x	0 - 1000 ppm

Tabelle 3-2: Messtechnik zur Abgas-Analyse

4. Erprobung

Die Fertigung eines ersten Funktionsmusters des Brenners zu Erprobungszwecken beruhte auf der in „3.1. Aufbau des Brenners mit integriertem Reformer“ gezeigten und in der CFD-Simulation optimierten Konstruktion.

4.1. Verhalten der geordneten Packung

Aufgrund der vergrößerten katalytisch aktiven Oberfläche der geordneten Packung gegenüber der Schüttung (ca. 24% weniger Katalysatoren bei Schüttung gegenüber Packung) und die bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten zu erwartenden geringeren Druckverluste wurden die Brennerlagen anfangs mit einer geordneten Packung aus Katalysatoren bestückt. Pro Brennerlage sind in Strömungsrichtung 49, über die Breite 31 Katalysatoren händisch ausgerichtet worden. Dies ergibt pro Brennerlage etwa 1500, für den gesamten Brenner ca. 3000 ausgerichtete Katalysatoren.

Abbildung 4-1: Brenner mit ausgerichteter Katalysator-Packung vor der experimentellen Erprobung

Da es sich bei dem Katalysator um einen keramischen Träger handelt, wurde die Katalysator-Packung mechanisch stabilisiert und gegen Wärmedehnung in Längsrichtung und in der Breite durch den Einsatz von Edelstahl-Wolle geschützt. Fertigungsbedingte Höhenunterschiede innerhalb des Brennraumes und der Einfluss von Wärmeausdehnungen wurden durch den Einsatz von Abstands-Hülsen aus 1.4301 minimiert, die den integrierten Reformer in seiner Position in der Höhe fixieren. Somit wird der Kraftfluss innerhalb des Gesamtsys-

tems, ausgelöst durch die dynamische Verspannung, nicht auf die Katalysator-Packung geleitet sondern gezielt über die eingesetzten Abstandshülsen abgefangen.

Abbildung 4-2: geordnete katalytische Packung der oberen Brennerlage nach der Erprobung bei geringen Temperaturen (320°C bis 460°C)

Eine erste Erprobung des Brenners bis zu Oberflächentemperaturen von etwa 320°C bis 460°C zeigte, dass die angestrebte geordnete Packung mechanisch nicht stabil ist. Im mittleren Bereich der oberen Katalysator-Packung war ein vollständiger Verlust der geordneten Packung zu verzeichnen, ohne dass der Brenner äußere Einwirkungen (wie z.B. Erschütterungen) erfuhr. Im Randbereich des Brenners und teilweise innerhalb der mittleren Katalysator-Packung überstieg die Krafteinwirkung auf den Katalysator dessen Festigkeit, so dass es zum Bruch des Katalysator-Körpers kam.

Abbildung 4-3: geordnete katalytische Packung der unteren Brennerlage

Die untere Brennerlage zeigte weiterhin eine geordnete Struktur der Packung. Jedoch zeigte sich hier eine Verschiebung und Aufhäufung einzelner Katalysator-Reihen, so dass es zu einem Sperreffekt kam, hervorgerufen durch die Geometrie des Katalysators.

Für ein mobiles System eignet sich die geordnete Packung aufgrund seines mechanisch instabilen Verhaltens nicht. Zudem zeigt die geordnete Packung einen hohen zeitlichen Aufwand der Bestückung.

4.2. Instationäres Aufheizen

Aufgrund der zuvor gezeigten Instabilität der geordneten Packung wurde für das weitere Vorgehen eine zufällige Schüttung untersucht.

Für einen optimierten C_3H_8-Umsatz bei geringeren Temperaturen und die damit verbundenen erhöhten Leistungen innerhalb des instationären Aufheizbetriebes wurde eine Erprobung der Fraktionierung des katalytischen Brennraumes mit beiden vorhandenen Katalysatoren durchgeführt. Für Starttemperaturen von ca. 25°C wurde Katalysator FCCB-ENV1 im Eintrittsbereich des Brenners eingebracht. Durch den hier vorhandenen katalytischen Umsatz von H_2 bei Systemstart wird die dabei freiwerdende Reaktionsenthalpie konvektiv in den in Strömungsrichtung nachgeschalteten Katalysator FCCB2 eingebracht, um hier die LightOff-Temperatur von ca. 270°C für den Umsatz von C_3H_8 zu erreichen.

Abbildung 4-4: für Propan-Betrieb optimierte fraktionierte katalytische Brenner-Schüttung für der experimentellen Erprobung

Durch die hohe Aktivität des Katalysators FCCB-ENV1 ($GHSV_{30°C} \approx 120000\frac{1}{h}$) konnte das Reaktor-Volumen für diesen Katalysator gering gehalten werden (35mm Länge, 164mm Breite bei 6,5mm Brennraum-Höhe pro Brennerlage), um so den C_3H_8-Umsatz am wenig aktiven Katalysator FCCB2 durch ein größeres Reaktor-Volumen weiter zu unterstützen.

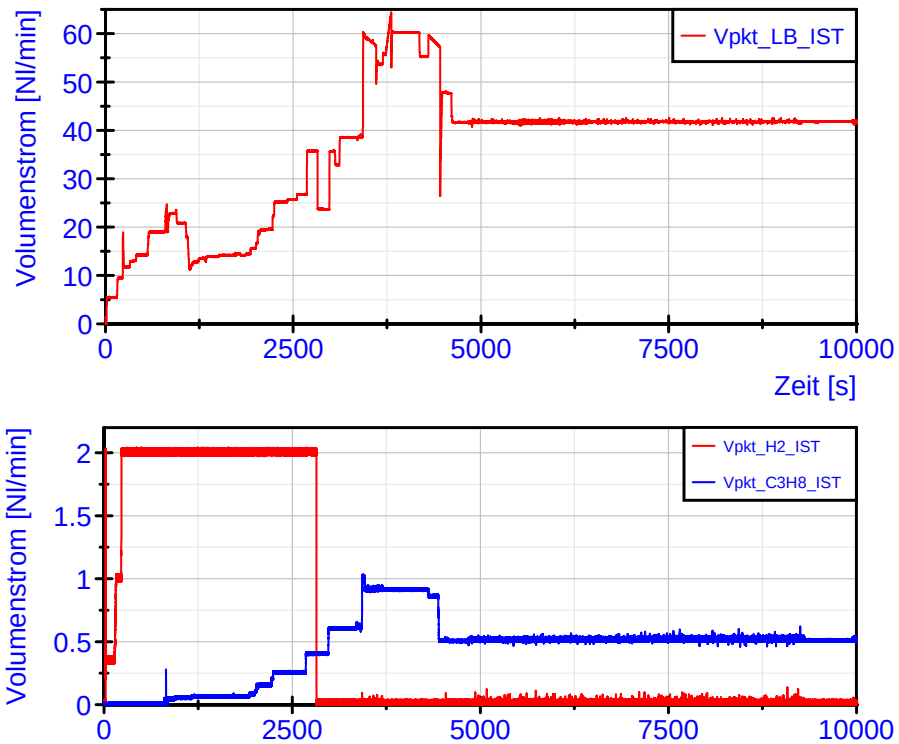


Abbildung 4-5: Brennstoff-Luft-Zufuhr des Brenners im instationären Aufheiz-Betrieb

Abbildung 4-5 zeigt beispielhaft den instationären Aufheizvorgang des Brenners, um Betriebstemperaturen von >700°C zu erreichen. Hierzu wird der Brenner im kalten Zustand (System-Starts) mit einem Wasserstoff-Luft-Gemisch betrieben. Ein überstöchiometrisches Wasserstoff-Luft-Gemisch ($\lambda = 1{,}5 \ldots 2{,}5$) mit bis zu 2Nl/min Wasserstoff (~360W) konnte vollständig auch bei einer Brenner-Temperatur von 25°C umgesetzt werden.

Bei Brenner-Oberflächentemperaturen von über 100°C im Eintrittsbereich des Brenners von (Abbildung 4-6) konnte der beginnende Umsatz von Propan unter kontinuierlicher Erhöhung der Propan-Brennstoffleistung (~30W/min) festgestellt werden.

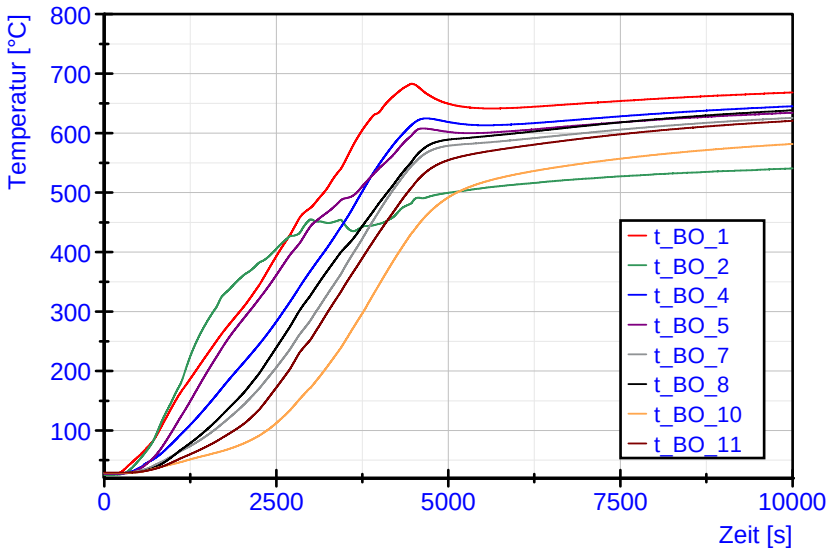


Abbildung 4-6: Brenner-Oberflächentemperaturen im instationären Aufheiz-Betrieb

Bei Brenner-Oberflächentemperaturen (Abbildung 4-6 bei etwa 2830 Sekunden) über 470°C im Eintrittsbereich des Brenners zeigte eine Abschaltung der Wasserstoff-Zufuhr eine Reduzierung des Kohlenmonoxid- und Kohlenwasserstoff-Anteils im Abgas (Abbildung 4-7), zurückzuführen auf den schnellen katalytischen Wasserstoff-Umsatz, der zu lokaler Unterstöchiometrie hinsichtlich des langsamen Propan-Verbrennung währen der Aufheizphase führt. Mit abgeschalteter Wasserstoff- und konstanter Propan-Zufuhr konnte eine Brennstoffleistung von ca. 1400W mit nahezu vollständigem Propan-Umsatz erreicht werden.

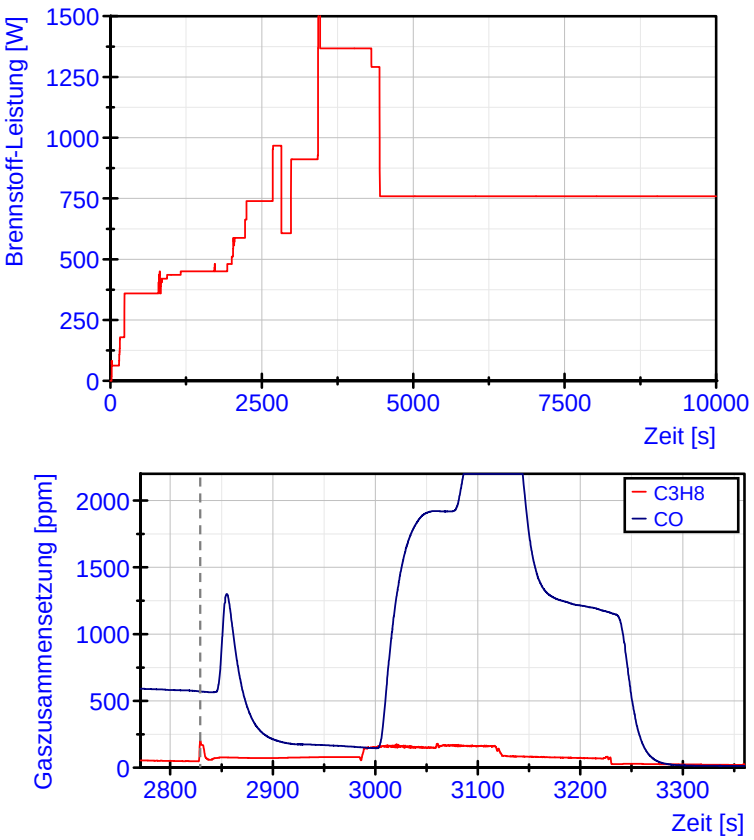


Abbildung 4-7: Abgas-Zusammensetzung und Brennstoff-Leistung währen des instationäre Aufheizbetriebs

Nach einer Laufzeit von ca. 45 Stunden bei Temperaturen oberhalb von 700°C konnte optisch eine Aufhellung der Oberfläche des Katalysators FCCB2 von schwarz/grau zu einem hellen grau festgestellt werden. Ein abweichendes Verhalten während der Betriebsführung konnte nicht festgestellt werden.

Abbildung 4-8: fraktionierte Brenner-Schüttung nach der experimentellen Erprobung

4.3. Stationäre Wärmeübertragung und Verbrennung

Für die Untersuchung der stationären Wärmeübertragung des Brenners an den integrierten Reformer wurde der Reformer im Gegenstrom mit Luft betrieben, da die nicht katalytisch beschichtete Reformer-Folie eine Dampfreformierung von Propan nicht ermöglichte. Der Volumenstrom der Reformer-Luft wurde für die Untersuchung des Verhaltens der Wärmeübertragung im Bereich ähnlicher Reynolds-Zahlen (~3Nl/min Luft) und Peclet-Zahlen (~5,5Nl/min Luft) hinsichtlich des realen Reformers variiert (Abbildung 4-9). Der Brenner wurde mit einem synthetisch erzeugten AOG-Propan-Luft-Gemisch betrieben.

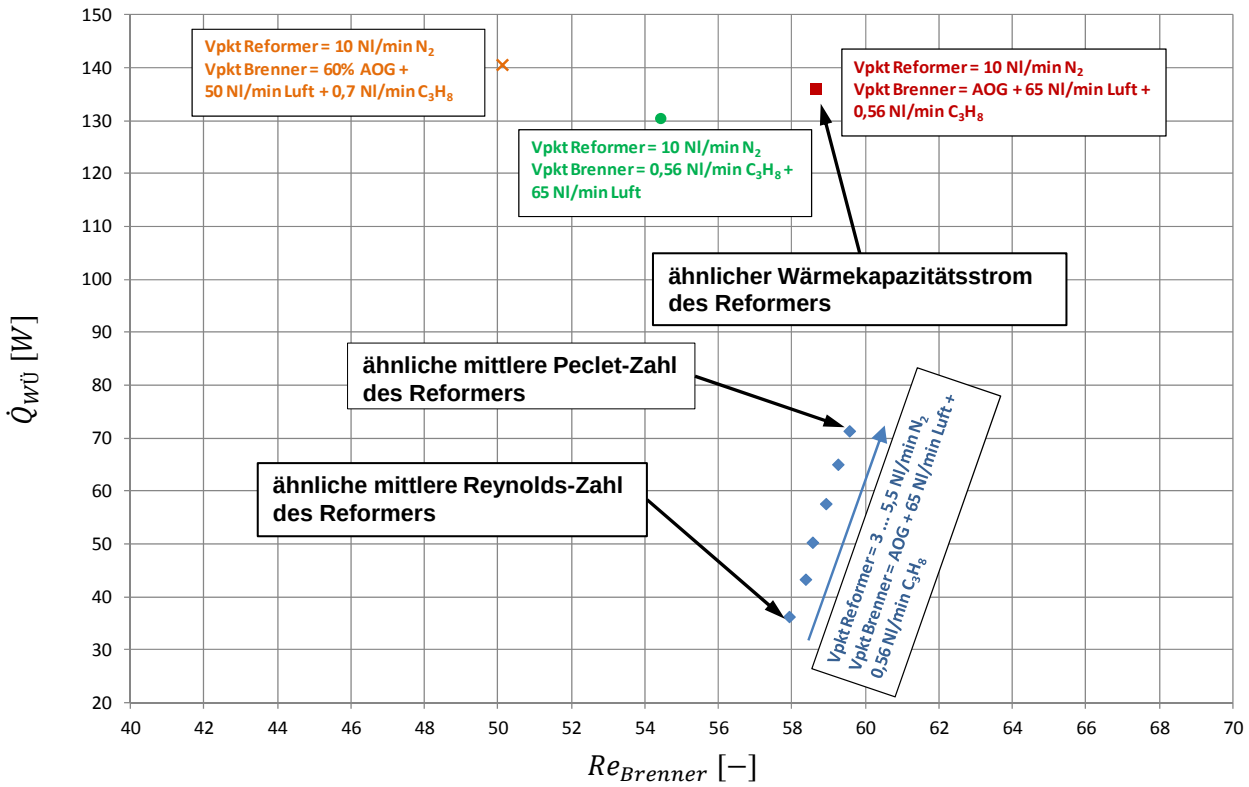


Abbildung 4-9: Wärmeübertragungsleistung von Brenner auf Reformer für unterschiedliche Strömungsstiuationen

Die Untersuchungen zeigten, dass eine Variation der Strömungsgeschwindigkeiten des Brenners und die damit verbundene Reynolds-Zahl des Brenners einen untergeordneten Einfluss an der Wärmeübertragung zeigen. Eine Erhöhung der Reformer-Strömungsgeschwindigkeit durch Erhöhung des Reformer-Volumenstroms zeigt jedoch einen deutlichen Einfluss auf die Wärmeübertragungsleistung, die zudem nahezu linear ist.

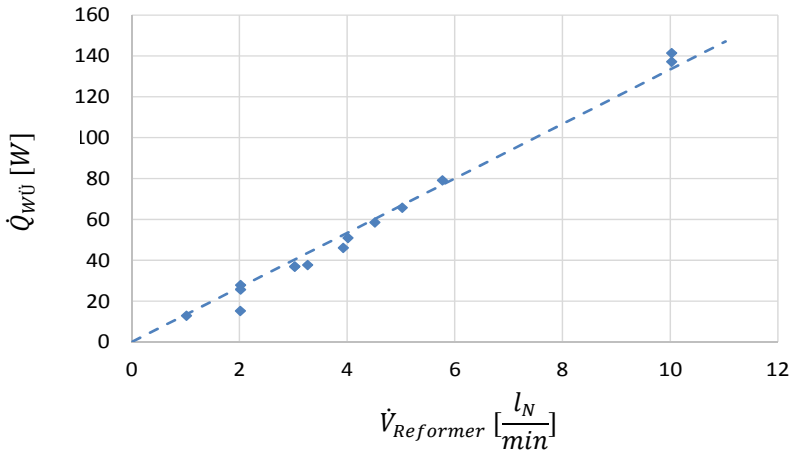


Abbildung 4-10: Wärmeübertragungsleistung in Abhängigkeit des Reformer-Volumenstroms

5. Mathematische Modellierung

Der Brenner mit integriertem Reformer wurde zweidimensional hinsichtlich der Impuls-, Energie- und Spezies-Erhaltung modelliert.

Erhaltung des Impulses (Geschwindigkeitsfeld)

$$\frac{\partial u^k}{\partial t} = \frac{\eta^k}{\rho^k} \cdot \left(\frac{4}{3}\frac{\partial^2 u^k}{\partial x^2} - \frac{2}{3}\frac{\partial^2 v^k}{\partial x \partial y}\right) - \frac{1}{\rho^k}\frac{\partial p^k}{\partial x} + \frac{\eta^k}{\rho^k} \cdot \left(\frac{\partial^2 u^k}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v^k}{\partial x \partial y}\right) - u^k \frac{\partial u^k}{\partial x} - v^k \frac{\partial u^k}{\partial y} \tag{5.1}$$

$$\frac{\partial v^k}{\partial t} = \frac{\eta^k}{\rho^k} \cdot \left(\frac{4}{3}\frac{\partial^2 v^k}{\partial y^2} - \frac{2}{3}\frac{\partial^2 u^k}{\partial x \partial y}\right) - \frac{1}{\rho^k}\frac{\partial p^k}{\partial y} + \frac{\eta^k}{\rho^k} \cdot \left(\frac{\partial^2 v^k}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u^k}{\partial x \partial y}\right) - v^k \frac{\partial v^k}{\partial y} - u^k \frac{\partial v^k}{\partial x} \tag{5.2}$$

Erhaltung der Spezies (Konzentrationsfeld)

$$\frac{dx_i^k}{dt} = -\frac{\partial(x_i^k \cdot u^k)}{\partial x} - \frac{\partial(x_i^k \cdot v^k)}{\partial y} + D_i^k \cdot \left(\frac{\partial^2 x_i^k}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 x_i^k}{\partial y^2}\right) + \frac{1}{dV^k} \cdot \sum \beta_i^k \cdot A_{MW}^{k-k} \cdot \Delta x_i^{k-k} + \frac{r_i^k}{\sum c_i^k} \tag{5.3}$$

Erhaltung der Energie (Temperaturfeld)

$$\begin{aligned}\frac{dT^k}{dt} = &-u^k \cdot \frac{\partial T^k}{\partial x} - v^k \frac{\partial T^k}{\partial y} + \frac{\lambda^k}{\rho^k \cdot c_p^k} \cdot \left(\frac{\partial^2 T^k}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T^k}{\partial y^2}\right) + \\ &\frac{1}{\rho^k \cdot c_p^k \cdot dV^k} \cdot \left(\sum \alpha^k \cdot A_{HT}^{k-k} \cdot \Delta T^{k-k} + \sum \frac{\lambda_m^{k-k}}{\delta_m^{k-k}} \cdot A_{HT,kond}^{k-k} \cdot \Delta T^{k-k}\right) + \\ &\frac{1}{\rho^k \cdot c_p^k} \cdot \sum_i r_i^k \cdot \left(-\Delta H_{f,i}\right)\end{aligned} \tag{5.4}$$

Die Bilanzierung erfolgt dabei anhand eines quasihomogenen, zweidimensionalen Modells, das auf Grundlage der finiten Volumenmethode das differentielle Volumenelement $dV = dx \cdot dy \cdot h$ erzeugt. Die differentiellen Schrittweiten dx und dy ergeben sich in Abhängigkeit der Anzahl finiter Volumina, durch die zweidimensionale Betrachtung ist die Höhe h in allen differentiellen Volumenelementen konstant.

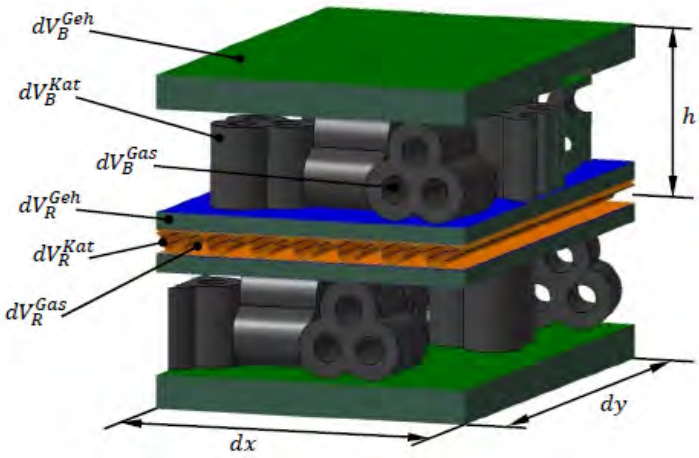


Abbildung 5-1: modelliertes differentielles Volumenelement

Innerhalb des differentiellen Volumenelements dV werden sechs Komponenten k betrachtet, die über Austauschterme gekoppelt sind. Jede Komponente k wird entsprechend ihrem differentiellen Volumen dV_k, den differentiellen Querschnittsflächen dA_{xk}, dA_{yk} und der jeweiligen

Komponenten-Austauschfläche dA_{k-k} modelliert. Die differentiellen Komponenten-Volumina sind:

- Brenner-Gehäuse: dV_{BGeh};
- Brenner-Katalysatoren: dV_{BKat};
- Brenner-Gas: dV_{BGas};
- Reformer-Gehäuse: dV_{RGeh};
- Reformer-Katalysator (Folienpackung): dV_{RKat};
- Reformer-Gas: dV_{RGas}.

Um die CPU-Zeiten in der numerischen Simulation zu optimieren, beschränkt sich diese Arbeit auf die Darstellung der folgenden Spezies i:

- O_2;
- N_2;
- H_2;
- C_3H_8;
- CO;
- CO_2;
- H_2O.

Hinsichtlich der Wärmeübertragung wurden örtliche Wärmeübergangskoeffizienten berechnet. Im Bereich des Brenners wurden diese nach Art der Wärmeübertragung nach Gnielinski berechnet, innerhalb des Reformers wurde die Wärmeübertragung nach Art einer Kanalströmung modelliert. [2] Die notwendigen Reaktionsmechanismen für die Verbrennung von Wasserstoff, Kohlenmonoxid und Propan wurden der Literatur auf Basis einfacher Einschrittmechanismen entnommen.

Sowohl der Brenner als auch der Reformer sind symmetrisch gegenüber einer in Strömungsrichtung orientierten Schnittebene aufgebaut. Da die Katalysator-Schüttung des Brenners als eine homogen verteilte, poröse Schüttung angenommen wird, ist eine Symmetriebetrachtung in Strömungsrichtung sinnvoll.

Neben der symmetrischen Konstruktion in Strömungsrichtung liegt ebenfalls eine symmetrische und geometrisch gleiche Konstruktion beider Brennräume, sowohl oberhalb als auch unterhalb des in Sandwichbauweise integrierten Reformers, vor. Um den Aufwand der Modellierung und die dafür notwendigen Rechenkapazitäten weiter zu reduzieren, wird eine zusätzliche Symmetrierung in Höhenrichtung des Brenners und des Reformers vorgenommen, so dass die Symmetrieebene exakt innerhalb des Reformer-Gehäuses parallel und mittig zwischen Gehäuse-Oberteil und Gehäuse-Unterteil verläuft (halbe Höhe der Konstruktion).

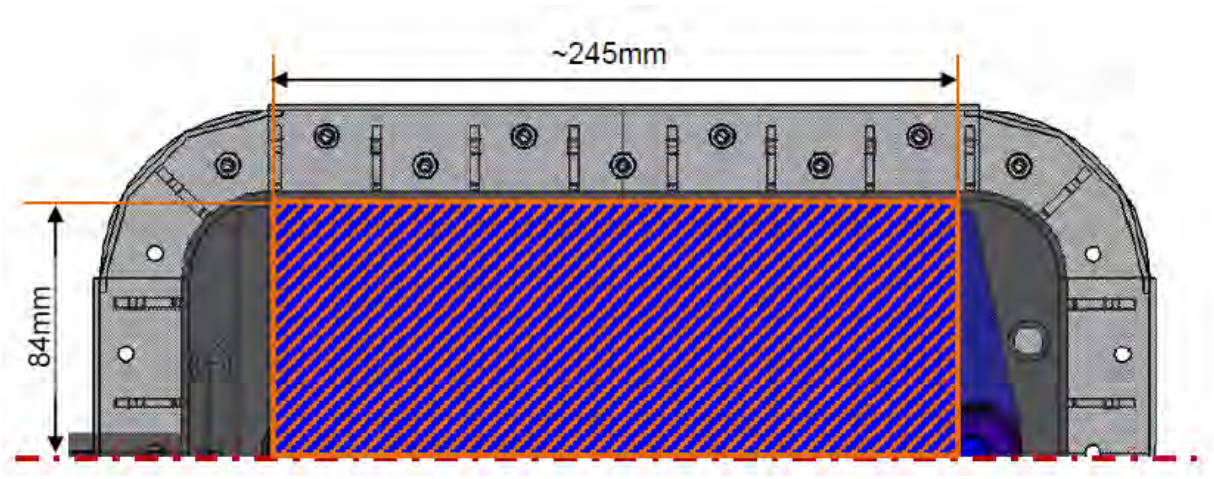


Abbildung 5-2: Modellgebiet mit Symmetriebetrachtung

Vorwiegend bei konvektionsdominanten Strömungen mit geringer Viskosität führt die örtliche Diskretisierung anhand des zentralen Differenzenquotienten zu numerischen Instabilitäten und oszillierenden Lösungen, die nicht anhand physikalischer Zusammen-hänge erklärbar sind und damit nicht realistische Lösungen erzeugen. [3]

Das sogenannte upwind-Verfahren löst die vorhergenannten Probleme auf numerischer Seite. Es sieht die Verwendung eines einseitigen Differenzenquotienten vor und betrachtet ihn entweder links- oder rechtsseitig, je nachdem, aus welcher Richtung die physikalische Information fließt. Der Informationsfluss wird bei einer erzwungenen Strömung anhand des Geschwindigkeitsfeldes transportiert, so dass das upwind-Verfahren folgende formale Bedingung zeigt:

$$\frac{\partial f}{\partial x} \approx \begin{cases} \frac{f_x - f_{x-1}}{\Delta x} & \text{für } u_x \geq 0 \\ \frac{f_{x+1} - f_x}{\Delta x} & \text{für } u_x < 0 \end{cases}$$

$$\frac{\partial f}{\partial y} \approx \begin{cases} \frac{f_y - f_{y-1}}{\Delta y} & \text{für } v_y \geq 0 \\ \frac{f_{x+1} - f_x}{\Delta y} & \text{für } v_y < 0 \end{cases}$$

Die Lösung der Erhaltungsgleichungen für Impuls, Spezies und Energie unter Verwendung eines einzelnen Gitters, das alle Zustände auf der gleichen Gitterkoordinate enthält, führt besonders bezüglich der Berechnung der Druckgradienten $\frac{\partial p^k}{\partial x}$ und $\frac{\partial p^k}{\partial y}$ der Impulserhaltungsgleichung auf mögliche numerische Instabilitäten und kann zu physikalisch unrealistischen und oszillierenden Ergebnissen führen. [4]

Diese Problematik wird in der numerischen Strömungssimulation häufig durch die Verwendung versetzter Gitter gelöst, da nicht zwingend alle Zustände an gleichen Gitterkoordinaten vorhanden sein müssen.

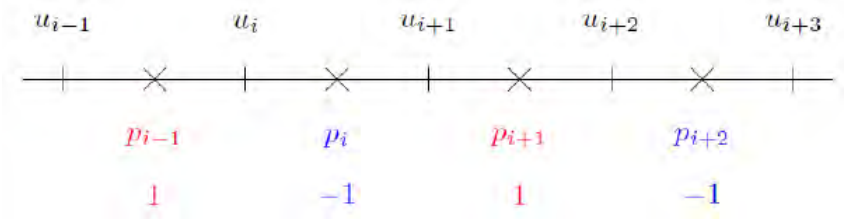


Abbildung 5-3: versetztes Gitter

Die Schwierigkeit bei der Berechnung des Geschwindigkeitsfeldes liegt in der Berechnung der Druckgradienten $\frac{\partial p^k}{\partial x}$ und $\frac{\partial p^k}{\partial y}$ auf Grundlage eines Druckfeldes. Um ein stabiles und realistisches Geschwindigkeitsfeld zu generieren, wurde der von Patankar 1979 entwickelte sogenannte SIMPLER-Algorithmus (Semi Implicit Method for Pressure Linked Equations Revised, [5]) als Splitting-Verfahren der Druckprojektionsmethode inkompressibler Fluide hinsichtlich einer kompressiblen Betrachtung erweitert und verwendet.

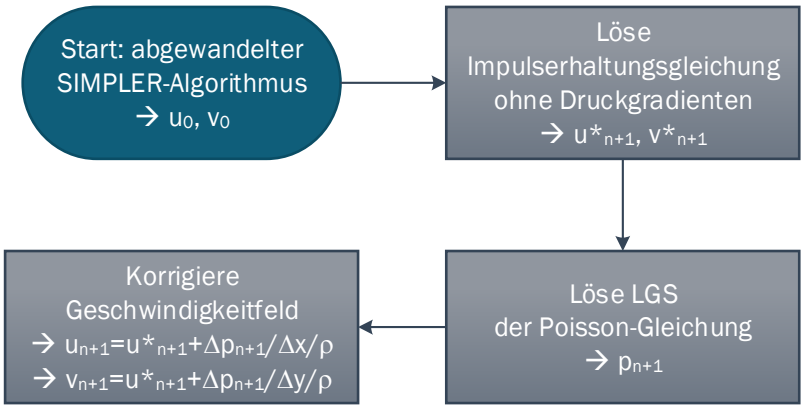


Abbildung 5-4: abgewandelter SIMPLER-Algorithmus

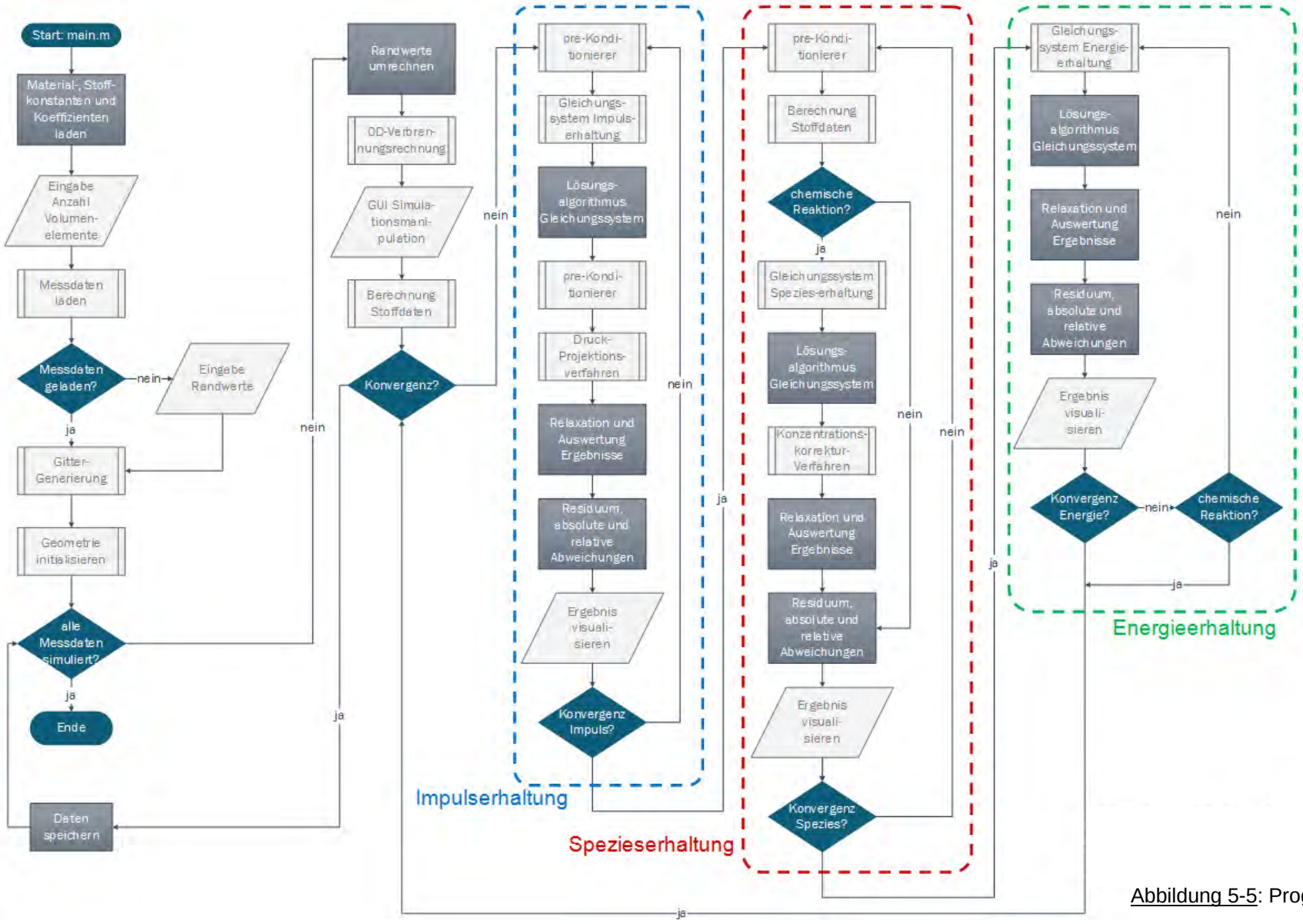


Abbildung 5-5: Programmablauf [8]

6. Modellverifikation

Hinsichtlich der Modellverifikation ist es notwendig, diejenigen Modell-Parameter dahingehend zu modifizieren und anzupassen, dass Simulationsergebnisse qualitativ und, von geringen Abweichungen abgesehen, auch quantitativ experimentelle Ergebnisse widerspiegeln und vorhersagen können. Es ist daher sinnvoll, die experimentelle Modellverifikation so zu gestalten, dass nur wenige Parameter des Modells verändert werden müssen, um eine Anpassung zwischen Modell und Realität erreichen zu können. So erzeugt eine Modellverifikation auf Grundlage experimenteller Untersuchungen mit geringer Komplexität diejenigen Modellparameter, die in Modellverifikationen mit höherer Komplexität als bekannt und verifiziert angenommen werden können.

Aus dieser Überlegung resultiert das in Abbildung 6-1 dargestellte Vorgehen des hier gezeigten Kapitels. Die Modellverifikation beginnt mit der experimentellen und numerischen Untersuchung des Brenners anhand von Verlustmechanismen. Der Brenner wird mit Luft bei hoher Eintrittstemperatur betrieben, der Reformer wird nicht durchströmt, so dass der Einfluss der Wärmeübertragung an den integrierten Reformer unberücksichtigt bleibt. Auf Basis der identifizierten Modellparameter wird im nächsten Schritt die Wärmeübertragung betrachtet. Sowohl Brenner als auch Reformer werden mit Luft betrieben, so dass die numerische Simulation den Einfluss der Wärmeübertragung berücksichtigt. Die Charakterisierung unter dem Einfluss der Verbrennung im Brenner und der Wärmeübertragung an den Reformer geschieht auf Basis der bis dahin festgelegten Modell-Parameter und bildet den Abschluss des Kapitels.

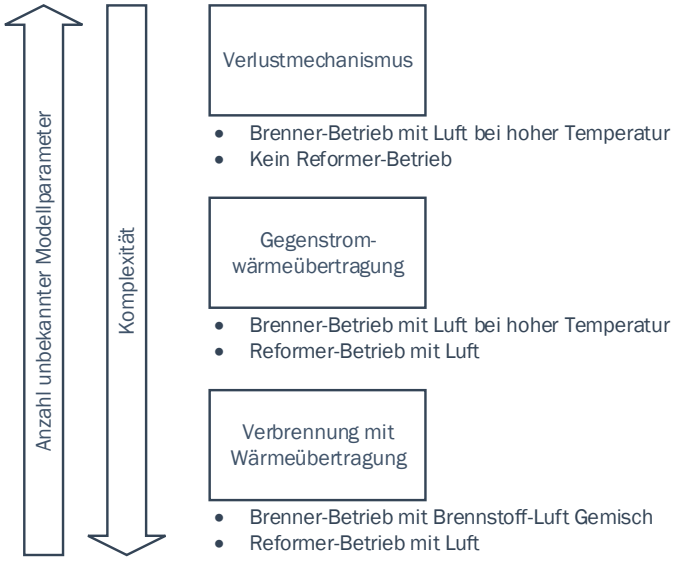


Abbildung 6-1: Vorgehensweise der Modellverifikation

Die Verifikation des zweidimensionalen Modells des Brenners mit integriertem Reformer stützt sich vorwiegend auf die gemessenen Oberflächentemperaturen des Brenners, da diese sich für die Modellverifikation besonders eignen, denn sie messen direkt die Brenner-Gehäuse-Temperatur, die in der Modellierung ebenfalls numerisch abgebildet ist. Es werden hierzu insgesamt zwölf Temperaturen gemessen (Abbildung 3-17 und Tabelle 6-1), vier

Messstellen in der Symmetrieachse des Brenners ($y = 0mm$) sowie je vier weitere, um beidseitig 60mm zur Symmetrieachse des Brenners versetze Messstellen ($y = \pm 60mm$). Da das Modell, wie in „5. Mathematische Modellierung“ beschrieben, in y-Richtung von $y = 0mm$ bis $y = 84mm$ (halbe Breite des Brenners) aufgrund der festgestellten Symmetrie aufgebaut ist, werden die experimentell ermittelten Oberflächentemperaturen für $y = 60mm$ und $y = -60mm$ in der Verifikation der Messdaten arithmetisch gemittelt. Gerechtfertigt wird diese Mittelung aufgrund der experimentell ermittelten Temperaturprofile, die beispielhaft für eine Verlustmessung in Abbildung 6-2 dargestellt sind. Die außerhalb der Symmetrieachse ermittelten Oberflächentemperaturen ($y = \pm 60mm$) zeigen lediglich eine geringe Abweichungen in der Größenordnung einiger Kelvin voneinander.

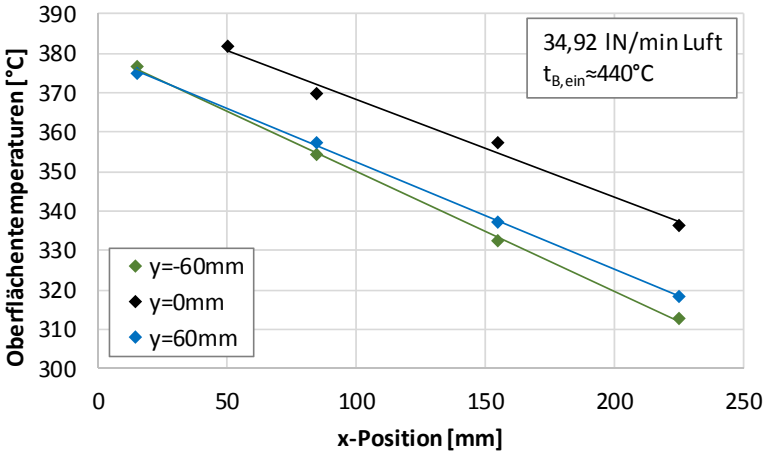


Abbildung 6-2: experimentell ermitteltes Temperaturprofil der Brenner-Oberfläche einer Verlustmessung

Durch die Mittelung der Oberflächentemperaturen ergeben sich die in Tabelle 6-1 aufgeführten auf die experimentelle Modell-Verifikation bezogenen Oberflächentemperaturen mit Positionsangaben sowie die Benennung der Oberflächentemperatur. Die Oberflächentemperaturen $t_B^{Geh,1}$ bis $t_B^{Geh,4}$ der Simulation befinden sich jeweils auf der Symmetrieachse ($y = 0mm$) des Brenners, $t_B^{Geh,5}$ bis $t_B^{Geh,8}$ zeigen die Oberflächentemperaturen in der Simulation für $y = 60mm$.

Position auf Brenner-Gehäuse		gemessene Oberflächentemperatur	Oberflächentemperatur in Simulation
x in mm	y in mm		
50	0	$t_{B,O}^{2}$	$\triangleq t_B^{Geh,1}$
85		$t_{B,O}^{5}$	$\triangleq t_B^{Geh,2}$
155		$t_{B,O}^{8}$	$\triangleq t_B^{Geh,3}$
225		$t_{B,O}^{11}$	$\triangleq t_B^{Geh,4}$
15	60	$\frac{1}{2}\left(t_{B,O}^{1} + t_{B,O}^{3}\right)$	$\triangleq t_B^{Geh,5}$
85		$\frac{1}{2}\left(t_{B,O}^{4} + t_{B,O}^{6}\right)$	$\triangleq t_B^{Geh,6}$
155		$\frac{1}{2}\left(t_{B,O}^{7} + t_{B,O}^{9}\right)$	$\triangleq t_B^{Geh,7}$
225		$\frac{1}{2}\left(t_{B,O}^{10} + t_{B,O}^{12}\right)$	$\triangleq t_B^{Geh,8}$

Tabelle 6-1: Oberflächentemperaturen bezüglich der experimentellen Modell-Verifikation

Dieses Vorgehen erzeugt nach Abbildung 6-1 durch die Untersuchung der Verlustmechanismen die Anströmsituation der Brenner-Luft, die damit für die weitere Arbeit festgelegt wird. Die Gegenstromwärmeübertragung zeigt den Einfluss der Anströmsituation des Reformers auf die Oberflächentemperaturen bei konstanter Anströmsituation der Brenner-Luft und legt das Anströmprofil des Reformers fest. Für die Untersuchung der Verbrennung mit Wärmeübertragung liegt dann nur noch die unbekannte Anströmsituation des Brenners mit Brenngas vor die, so weit möglich, identifiziert wird.

Alle Randwerte der Simulation (Temperaturen und Stoffmengenströme) entsprechen den anhand des Prüfstandes ermittelten experimentellen Ergebnissen und sind das arithmetische Mittel eines Zeitraums von 100 Sekunden im stationären Betrieb.

Die numerische Simulation wurde anhand eines Gitters mit 70 Elementen in x-Richtung und 50 Elementen in y-Richtung durchgeführt, wodurch sich die differentiellen Abstände $dx = 3{,}5mm$ und $dy = 1{,}68mm$ ergeben. Auf eine feinere Diskretisierung durch eine höhere Anzahl an differentiellen Elementen wurde zu Gunsten einer kürzeren CPU-Zeit verzichtet. Grundsätzlich zeigt die numerische Simulation jedoch eine gute Gitterunabhängigkeit der Lösung, auch bei stark verringerter Diskretisierung.

Die Modellverifikation wird in diesem Kapitel nur anhand ausgewählter Ergebnisse dargestellt. Sie sind stellvertretend für weitere Ergebnisse, die sowohl im Experiment als auch in der Simulation erhoben wurden, und zeigen untereinander ein analoges Verhalten des Systems.

6.1. Verlustmechanismus

Die Modellverifikation beginnt mit der geringsten Anzahl freier Modell-Parameter und wird anhand des Verlustmechanismus‘ des Brenners experimentell untersucht. Besonders im Betrieb des Brenners bei hohen Temperaturen können Verluste nicht mehr vernachlässigt werden, da durch den Verlustwärmestrom des Brenners, im Betrieb oberhalb von 400°C, die Oberflächentemperatur der den Brenner umgebenen Hotbox spürbar erhöht war.

Für die Modellverifikation wurde der Brenner lediglich mit Luft betrieben, die anhand der in den Prüfstand integrierten Heizpatrone vorgewärmt wurde. Der Reformer wurde nicht durchströmt. So konnte sowohl der Einfluss der Verbrennung als auch der Wärmeübertragung an den integrierten Reformer ausgeschlossen werden.

Abbildung 6-3 zeigt das simulierte Strömungsfeld des Brenners bei relativ gleichmäßiger Anströmung und dem damit verbundenen gering ausgeprägtem Geschwindigkeitsprofil auf dem Eintritts-Rand des Brenners. Als Randwerte der Simulation wurden die experimentell ermittelte Eintrittstemperatur von etwa 440°C und der eingeleitete Normvolumenstrom der Brenner-Luft von etwa $35\,\frac{l_N}{min}$ verwendet.

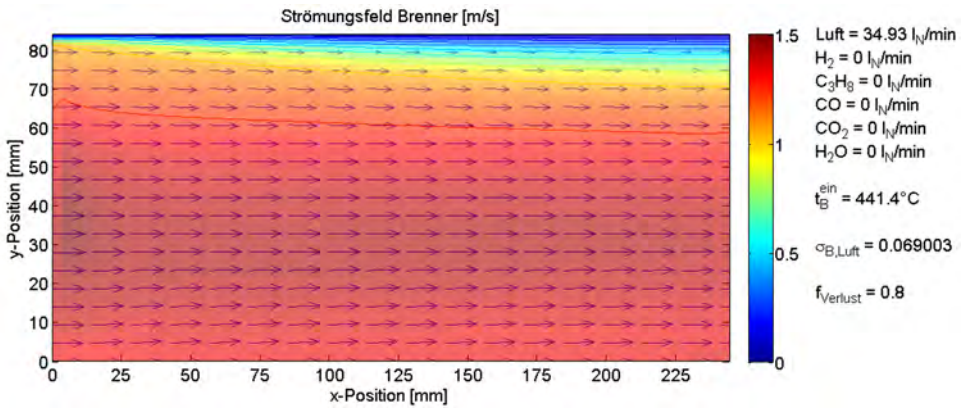


Abbildung 6-3: Simuliertes Strömungsfeld des Brenners mit gering ausgeprägtem Anströmprofil

Grundsätzlich zeigt die Simulation ein plausibles Ergebnis. Durch relativ geringe Strömungsgeschwindigkeiten von maximal $1{,}5\,\frac{m}{s}$ und der „no slip"-Randbedingung auf der simulierten Wand des Brenners ($y = 84mm$) bildet sich in der Simulation eine durchaus realistische Grenzschicht in Richtung der Brenner-Wand aus. Die Gleichmäßigkeit der Rand-Geschwindigkeiten spiegeln sich in der Simulation im gleichmäßigen Geschwindigkeitsfeld des Brenners wider.

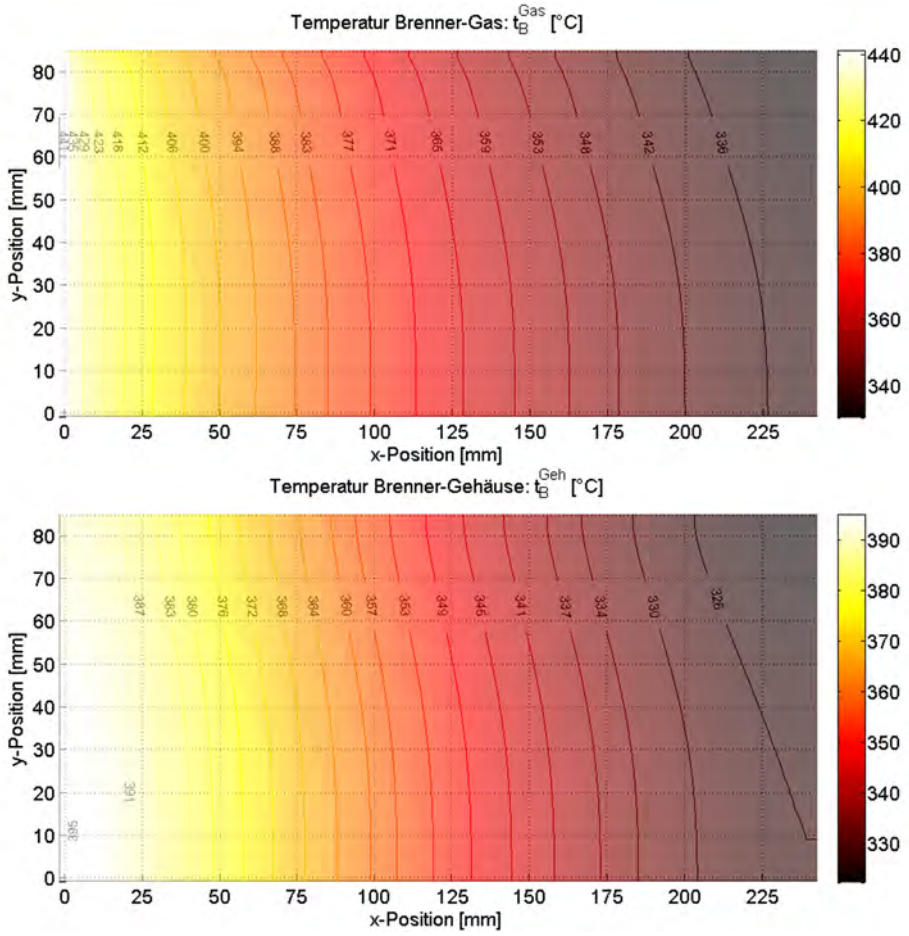


Abbildung 6-4: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse der Simulation bei gering ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners

Ebenfalls plausible zeigen sich die simulierten Temperaturfelder, die beispielhaft für das Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse in Abbildung 6-4 dargestellt sind. Durch die entspre-

chend gleichmäßige Anströmung, der ausgebildeten Grenzschicht und dem damit verbundenen homogenen konvektiven Enthalpieeintrag zeigen sich nur leicht gekrümmte Isothermen der Komponenten-Temperaturfelder. Der stromabwärts (in x-Richtung) zu erkennende Temperaturabfall der Komponenten ist auf die simulierten thermischen Verluste des Brenner-Gehäuses zurückzuführen. Hinsichtlich des Strömungsfeldes führen die Verluste zu einem „Einschnüren“ des Geschwindigkeitsfeldes des Brenners, hervorgerufen durch die mit abnehmender Temperatur steigende Dichte und der damit verbundenen Reaktion der kompressiblen Impulserhaltungsgleichung.

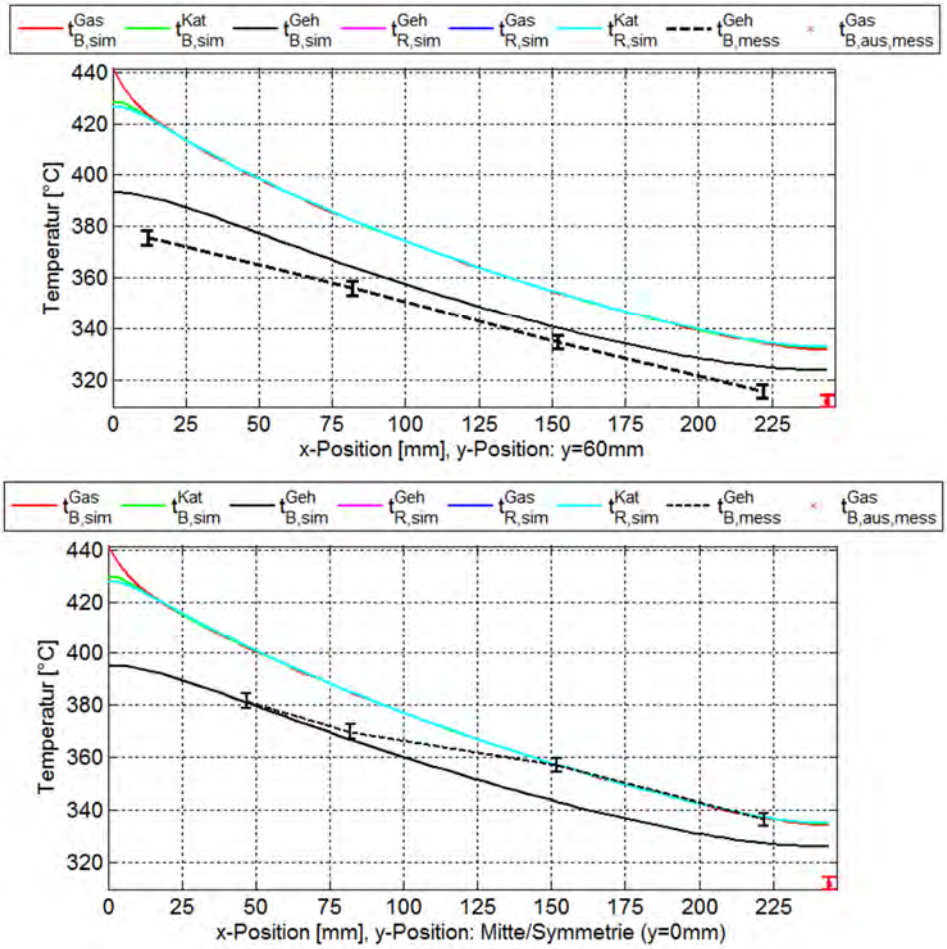


Abbildung 6-5: simulierte Temperaturprofile bei gering ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners ($\sigma_B^{Luft} \approx 0{,}069$) mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Abbildung 6-5 zeigt die simulierten Temperaturprofile (Index „sim“) entlang der x-Richtung sowie experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen des Brenner-Gehäuses (Index „mess“) für y=0mm und y=60mm.

Auffällig ist hier der nahezu gleiche Temperaturverlauf von Reformer-Gas, Reformer-Katalysator, Reformer-Gehäuse, Brenner-Katalysator und Brenner-Gas in der Simulation. Da der Reformer nicht durchströmt wird, damit konvektiv keine Wärme abführt und auch keine Verluste durch die in den Brenner integrierte Bauweise nach außen aufzeigt, nehmen alle Reformer-Komponenten eine zum Brenner-Gas und Brenner-Katalysator ähnliche Temperatur an. Zudem zeigt sich eine Differenz der simulierten Temperatur des Brenner-Gases ($t_{B,sim}^{Gas}$) am Austritt des simulierten Modell-Gebietes zur experimentell ermittelten Austritts-

temperatur des Brenners ($t_{B,aus,mess}^{Gas}$). Die Austrittstemperatur des Brenner-Gases wird anhand eines Thermoelements ermittelt, das in die Rohrleitung des Brenners eingebracht ist. Die Messstelle ist in direkter Nähe des Brenners eingebracht, jedoch wird der Bereich zwischen dem zweidimensionalen Modell-Gebiet und der Messstelle nicht weiter in der Modellierung abgebildet. Dieser Teil des Brenners erzeugt allerdings ebenfalls thermische Verluste. In dem hier gezeigten Fall liegt die Differenz zwischen gemessener und numerischer Austrittstemperatur des Brenner-Gases bei etwa 40W und ist durchaus anhand thermischer Verluste plausibel zu erklären. Die Brenner-Austrittstemperatur ist daher hinsichtlich der Modellverifizierung nur bedingt verwendbar.

Die dargestellten Oberflächen-Temperaturprofile der Simulation spiegeln den experimentellen Verlauf der Oberflächentemperaturen qualitativ wider. Es zeigt sich jedoch, dass die Oberflächentemperaturen für y=0mm in der Simulation im stromabwärts gelegenen Bereich des Brenners unter den experimentell ermittelten Oberflächentemperaturen liegen. Für y=60mm liegen die Oberflächentemperaturen in der Simulation generell oberhalb der gemessenen Oberflächentemperaturen. Es ist daher anzunehmen, dass der tatsächliche konvektive und vom Strömungsfeld transportierte Enthalpieeintrag im oberen Bereich des Brenners gegenüber der Simulation in reduzierter Form vorliegt. Die Verringerung des konvektiven Enthalpieeintrags wird in der Simulation durch eine geringere Standardabweichung der Brenner-Luft erreicht, die dazu führt, dass das Anströmprofil des Brenners eine stärkere Ausprägung aufweist. Abbildung 6-6 zeigt für ein solches Strömungsprofil das simulierte Strömungsfeld des Brenners.

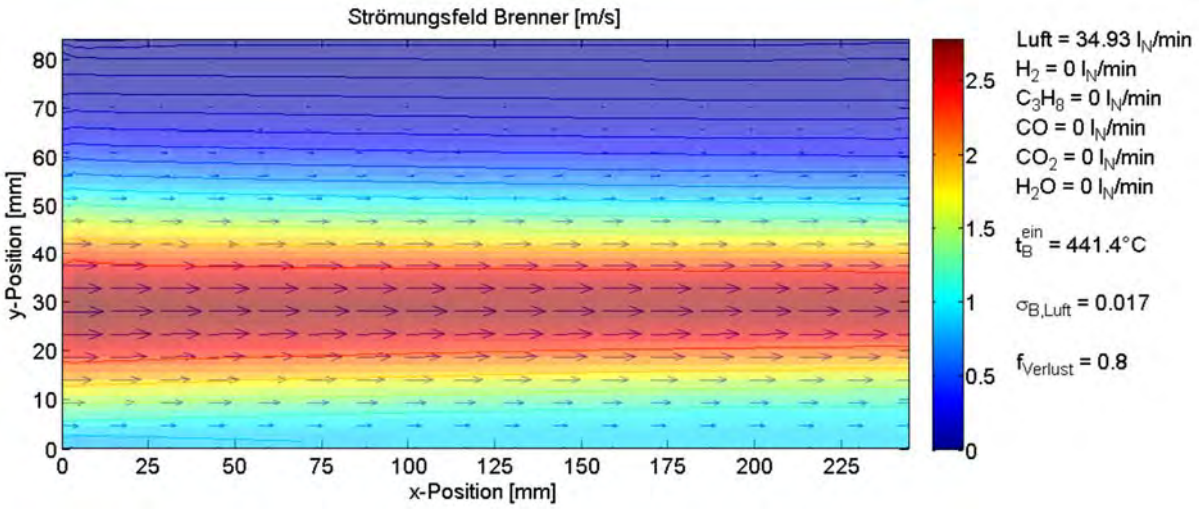


Abbildung 6-6: Strömungsfeld des Brenners bei ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners

Trotz lokal höherer Geschwindigkeiten im Gegensatz zu der in Abbildung 6-3 dargestellten Strömungssituation (mit gleichmäßiger Anströmung) zeigt sich in der Simulation ein laminares Strömungsfeld, hervorgerufen durch relativ geringe Strömungsgeschwindigkeiten von maximal ca. $2{,}8\frac{m}{s}$. Die Änderung des Anströmprofils zeigt zudem eine direkte Auswirkung auf das Strömungsfeld, dass ein entsprechend des Anströmprofils angepasste Charakteristik annimmt.

Dieses Geschwindigkeitsfeld beeinflusst durch den konvektiv stattfindenden Enthalpietransport direkt die Energieerhaltung und damit das Temperaturfeld des Brenners. Durch die Wärmeübertragung an die angrenzenden Komponenten und die damit verbundene Kopplung der Energieerhaltungsgleichungen der Komponenten untereinander nimmt die Brenner-Strömung somit indirekt Einfluss auf die Temperaturausprägung des gesamten simulierten Brenner-Reformer-Systems.

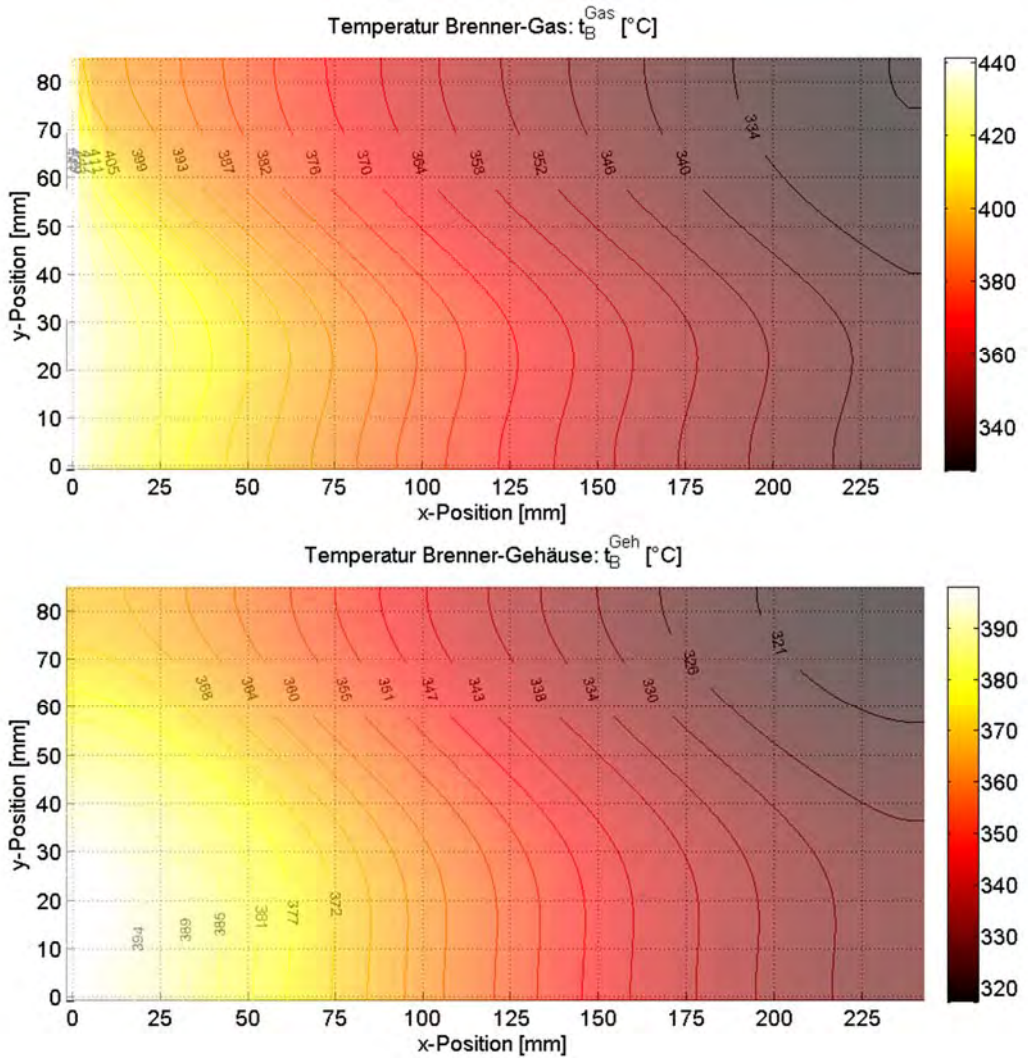


Abbildung 6-7: Temperaturfelder der Simulation bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners

Die in der Simulation berechneten Temperaturfelder sind in Abbildung 6-7 dargestellt und zeigen den Einfluss der Brenner-Strömung auf das Temperaturverhalten von Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse. Hervorzuheben sind die Verläufe der Isothermen, die eine Anpassung an das Geschwindigkeitsprofil des Brenners zeigten und dem konvektiven Enthalpieeintrag in das System widerspiegeln. Speziell die Verläufe der Isothermen des Brenner-Gases lassen die Strömung des Brenners erkennen. Unter dem Einfluss der Wärmeübertragung zeigt sich die Brenner-Strömung ebenfalls im Temperaturfeld des Brenner-Gehäuses, jedoch unter dem Einfluss der inneren Wärmeleitung des Brenner-Gehäuses, die örtlich hohe Temperaturgradienten in Richtung des Minimums „verschmiert“.

Der Vergleich der in der Simulation berechneten Temperaturfelder und der experimentell ermittelten Oberflächentemperaturen sind in Abbildung 6-8 anhand der Temperaturprofile für y=0mm und y=60mm dargestellt.

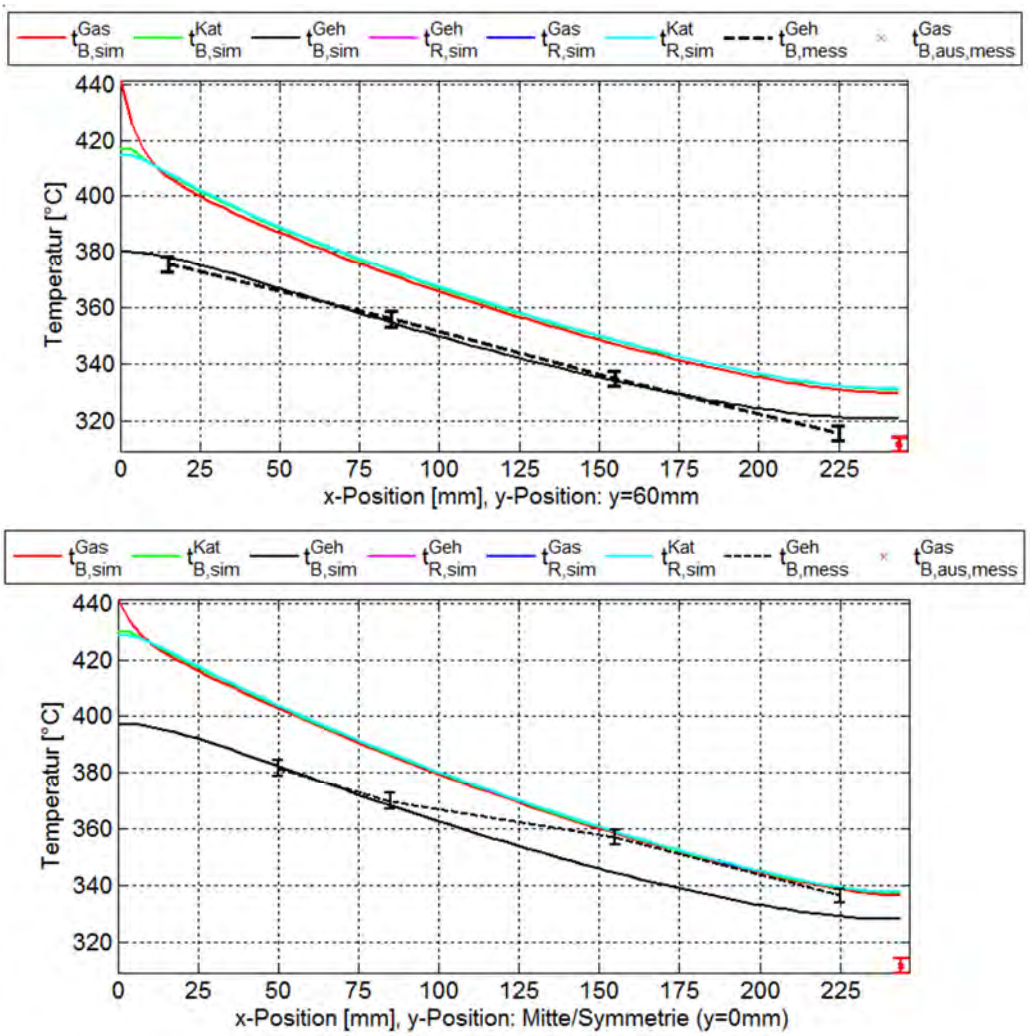


Abbildung 6-8: simulierte Temperaturprofile bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Die Ergebnisse der Simulation zeigen hinsichtlich der experimentellen Oberflächentemperaturen für y=60mm eine gute Übereinstimmung sowohl qualitativ als auch quantitativ mit den in der Simulation berechneten Brenner-Gehäusetemperaturen. Lediglich die stromabwärts gelegene experimentell ermittelte Oberflächentemperatur bei x=225mm zeigt eine geringe Abweichung zu den Simulationsergebnissen von etwa 2-3 Kelvin.

Für y=0mm zeigt die Simulation für die stromaufwärts bei x=50mm und x=85mm ermittelten Oberflächentemperaturen eine sehr gute quantitative Übereinstimmung. Dahingegen weicht die simulierte Brenner-Gehäuse-Temperatur im stromabwärts gelegenen Teil von den ermittelten Oberflächentemperaturen ab. Für x=155mm liegt die Abweichung bei etwa 12 Kelvin, für x=225mm ist die Differenz etwa 5 Kelvin. Es ist durchaus möglich, dass die konvektive Wärmeübertragung und Kopplung der Energiebilanzen zwischen Brenner-Gas auf Brenner-Gehäuse durch einen Kontaktwärmeübergang zwischen Brenner-Katalysator und Brenner-Gehäuse (aufgrund fertigungsbedingter Toleranzen) in der experimentellen Erprobung über-

lagert wurde. Dies führt auf eine lokal erhöhte Wärmeübertragungsleistung und zeigt sich in einer erhöhten und hier gemessenen Brenner-Oberflächentemperatur der Simulation, die diese Überlagerung nicht berücksichtigt. Dieses Verhalten zeigt sich systematisch, sowohl für den hier gezeigten Temperaturverlauf als auch für alle weiteren experimentell ermittelten Daten.

Grundsätzlich zeigt die Simulation für ein stärker ausgeprägtes Anströmprofil der Brenner-Luft eine gute Übereinstimmung der simulierten Brenner-Oberflächentemperatur mit den experimentellen und örtlich ermittelten Oberflächentemperaturen, sowohl für die hier gezeigten als auch für weitere durchgeführte und hier nicht explizit dargestellte Untersuchungen der Verluste des Brenners. Daher wird für die Arbeit ein ausgeprägtes Anströmprofil der Brenner-Luft verwendet. Das resultierende Geschwindigkeitsfeld unter den hier vorgegebenen Randbedingungen ist in Abbildung 6-9 dargestellt.

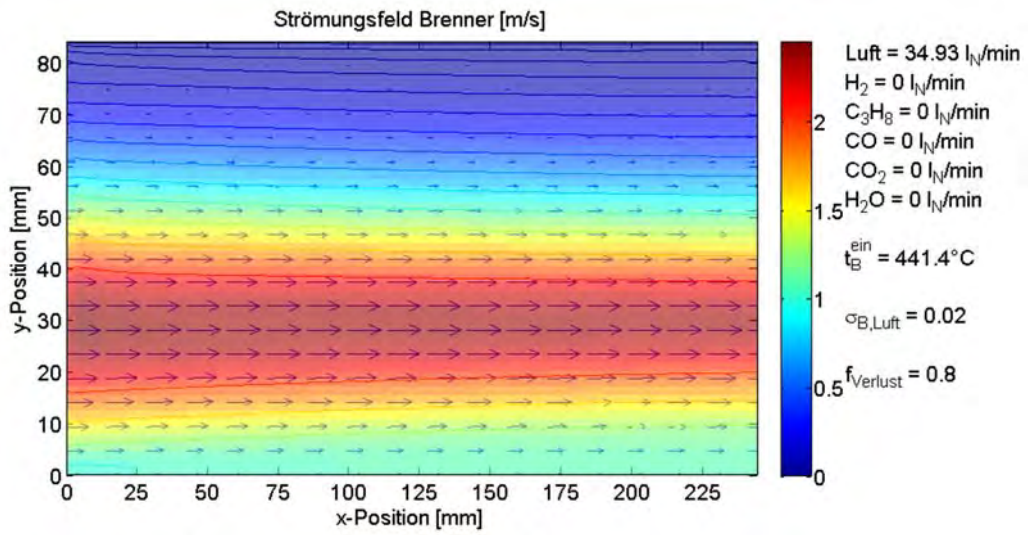


Abbildung 6-9: Strömungsfeld des Brenners mit festgelegter Anströmsituation

Dieses Anströmprofil der Brenner-Luft zeigt gegenüber einer in y-Richtung gleichmäßigen und während der Entwicklungsphase des Brenners angestrebten Anströmsituation noch Optimierungspotential.

6.2. Gegenstromwärmeübertragung

Für die Verifikation der Gegenstromwärmeübertragung wurden sowohl Brenner als auch Reformer mit Luft betrieben. Analog zum Modellabgleich anhand von Verlustmechanismen wurde die Brenner-Luft mit Hilfe der in den Prüfstand integrierten Heizpatrone auf ein Temperaturniveau von über 500°C erhitz. Die Eintrittstemperatur des Reformers wurde lediglich auf ein Temperaturniveau von etwa 120°C gebracht, so dass der Reformer eine Wärmesenke hinsichtlich des Brenners bildete und die Wärmeübertragung durch eine treibende Temperaturdifferenz ermöglichte.

Als Randbedingungen der Simulation liegen hier ebenfalls die experimentellen Randbedingungen als Auszug einer Reihe experimenteller Untersuchungen vor, die ein grundsätzlich ähnliches Verhalten bei variierten Randbedingungen, sowohl für den Brenner als auch den

Reformer, zeigten. Für die Gegenstromwärmeübertragung bedeutet dies für den Brenner ein Luftvolumenstrom von etwa $50\frac{l_N}{min}$ mit einer Eintrittstemperatur von ca. 550°C. Der Reformer wurde mit einem Luftvolumenstrom von $10\frac{l_N}{min}$ mit etwa 125°C am Eintritt betrieben.

Abbildung 6-10 zeigt die simulierten Strömungsfelder für den Brenner und den Reformer mit stark ausgeprägtem Geschwindigkeitsprofil auf dem Eintrittsrand des Reformers und der zuvor festgelegten Anströmsituation des Brenners.

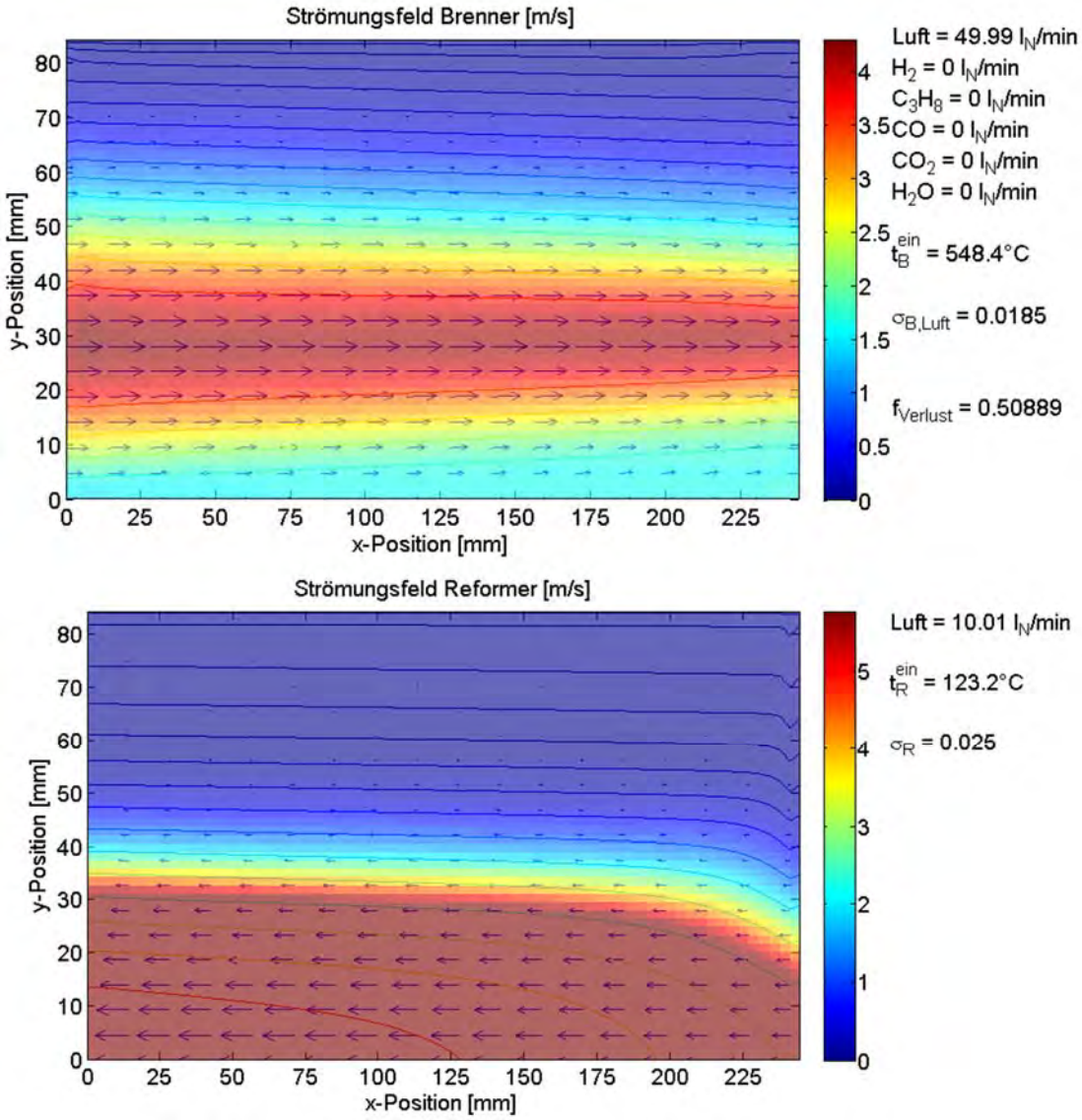


Abbildung 6-10: Strömungsfelder für Reformer und Brenner bei ausgeprägter Anströmung des Reformers

Das Anströmprofil des Reformers führt dazu, dass lediglich etwa die halbe Breite des Reformers durchströmt wird. Zudem zeigt die Strömungsrichtung den Betrieb des Brenners und Reformers im Gegenstrom an.

Aufgrund der Wärmeübertragung nimmt der Betrag der Strömungsgeschwindigkeit des Reformer-Gases entlang der negativen x-Position (in Strömungsrichtung des Reformers) weiter zu, hervorgerufen durch die mit der Temperaturerhöhung einhergehende Dichtereduzierung. Eine umgekehrte Reaktion ist an dem Strömungsfeld des Brenners zu erkennen, dessen

Dichtezunahme durch Temperaturabnahme, als Ursache der Wärmeübertragung und der Verluste des Brenner-Gehäuses, ein in Strömungsrichtung leicht trapezförmig zulaufendes Geschwindigkeitsfeld erzeugt.

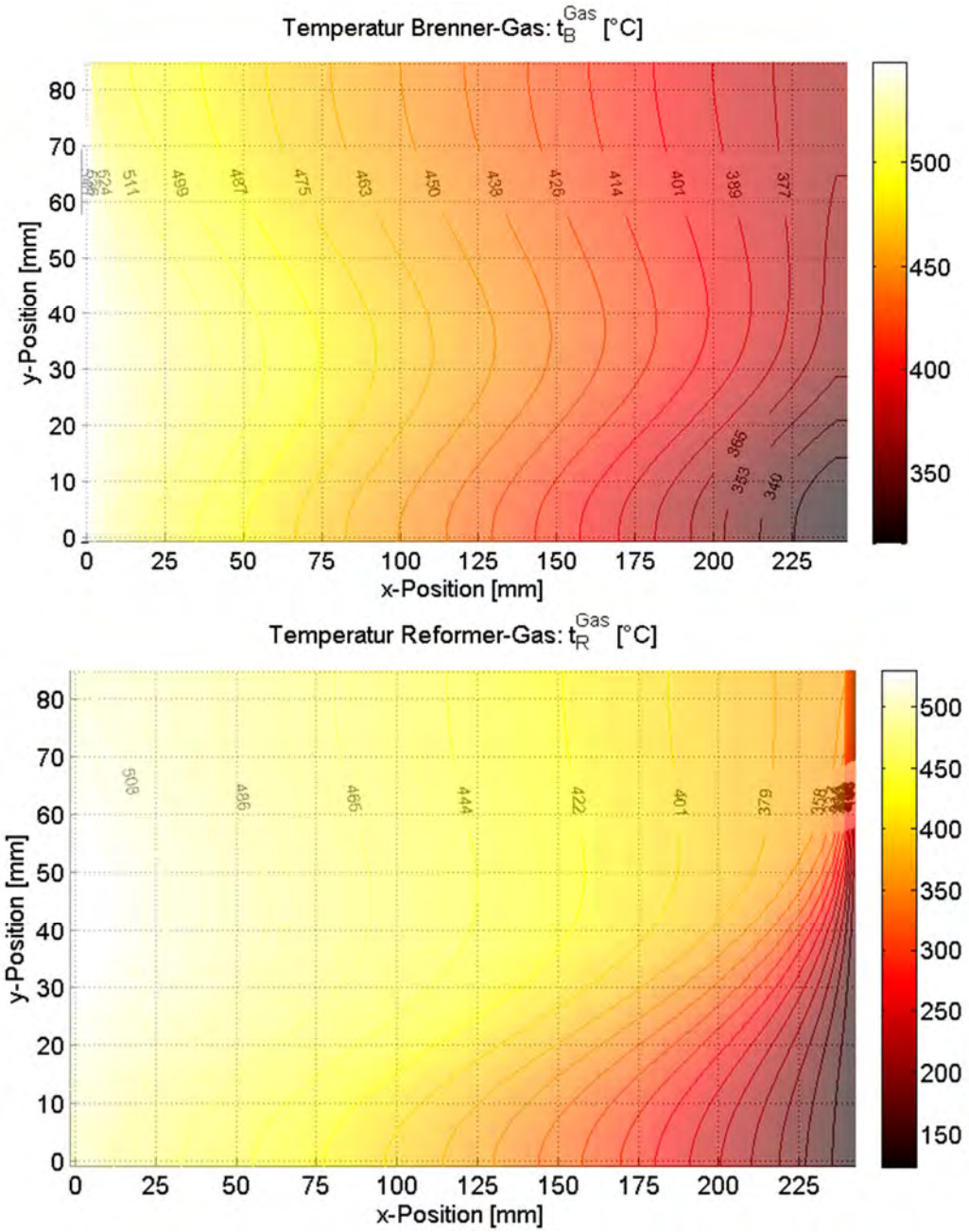


Abbildung 6-11: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Reformer-Gas der Simulation bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers

Das ausgeprägte Anströmprofil des Reformers in Kombination der Strömungssituation des Brenners führt auf die in Abbildung 6-11 dargestellten Temperaturprofile innerhalb der Simulation. Da der Reformer lediglich für $y < \sim 40mm$ durchströmt wird, ist in diesem Bereich entlang der x-Richtung eine deutlich Temperaturänderung, besonders im Eintrittsbereich des Reformers (x=245mm), anhand der dargestellten Isothermen zu erkennen. Hier nimmt das Strömungsfeld des Reformers konvektiv Wärme auf. Dieser Bereich zeigt durch die dort stattfindende Wärmeübertragung zwischen Brenner und Reformer in der Simulation eine deutliche lokale Abkühlung des Brenner-Gases. Da die Wärmeübertragung zwischen Bren-

ner und Reformer anhand eines Wärmestroms durch das Reformer-Gehäuse stattfindet, zeigt sich eine lokal hohe Flächenbelastung der Wärmeübertragung des Reformer-Gehäuses, dargestellt in Abbildung 6-12 anhand des auf die differentielle Fläche $dx \cdot dy$ bezogenen Wärmestroms $\dot{q}_{R,spez}^{Gas-Geh}$ zwischen Reformer-Gas und Reformer-Gehäuse:

$$\dot{q}_{R,spez}^{Gas-Geh} = \frac{d\dot{Q}_R^{Gas-Geh}}{dx \cdot dy} \tag{6.1}$$

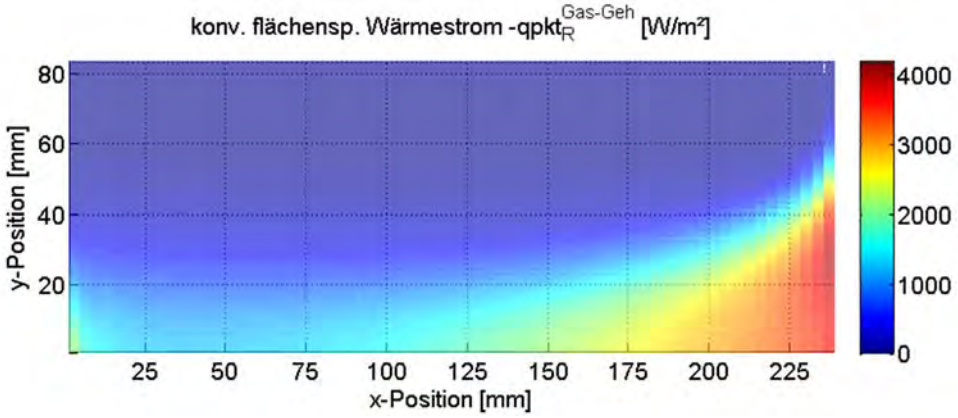


Abbildung 6-12: flächenspezifischer Wärmestrom zwischen Reformer-Gas und Reformer-Gehäuse für ein stark ausgeprägtes Anströmprofil des Reformers

Erkennbar ist eine sehr ungleichmäßige thermische Flächenbelastung des Reformers unter der Randbedingung einer stark ausgeprägten Anströmsituation des Reformers. Speziell im Eintrittsbereich des Reformers ist eine hohe Belastung zu erkennen, in Richtung des Brenner-Eintritts nimmt diese jedoch schnell ab und zeigt im restlichen Bereich des Reformers nahezu einen Wert von $0\,\frac{W}{m^2}$.

Eine entsprechend inhomogener Wärmestrom führt auf die zuvor gezeigten simulierten Temperaturfelder, die die in Abbildung 6-13 dargestellten Temperaturprofile für y=0mm und y=60mm erzeugen.

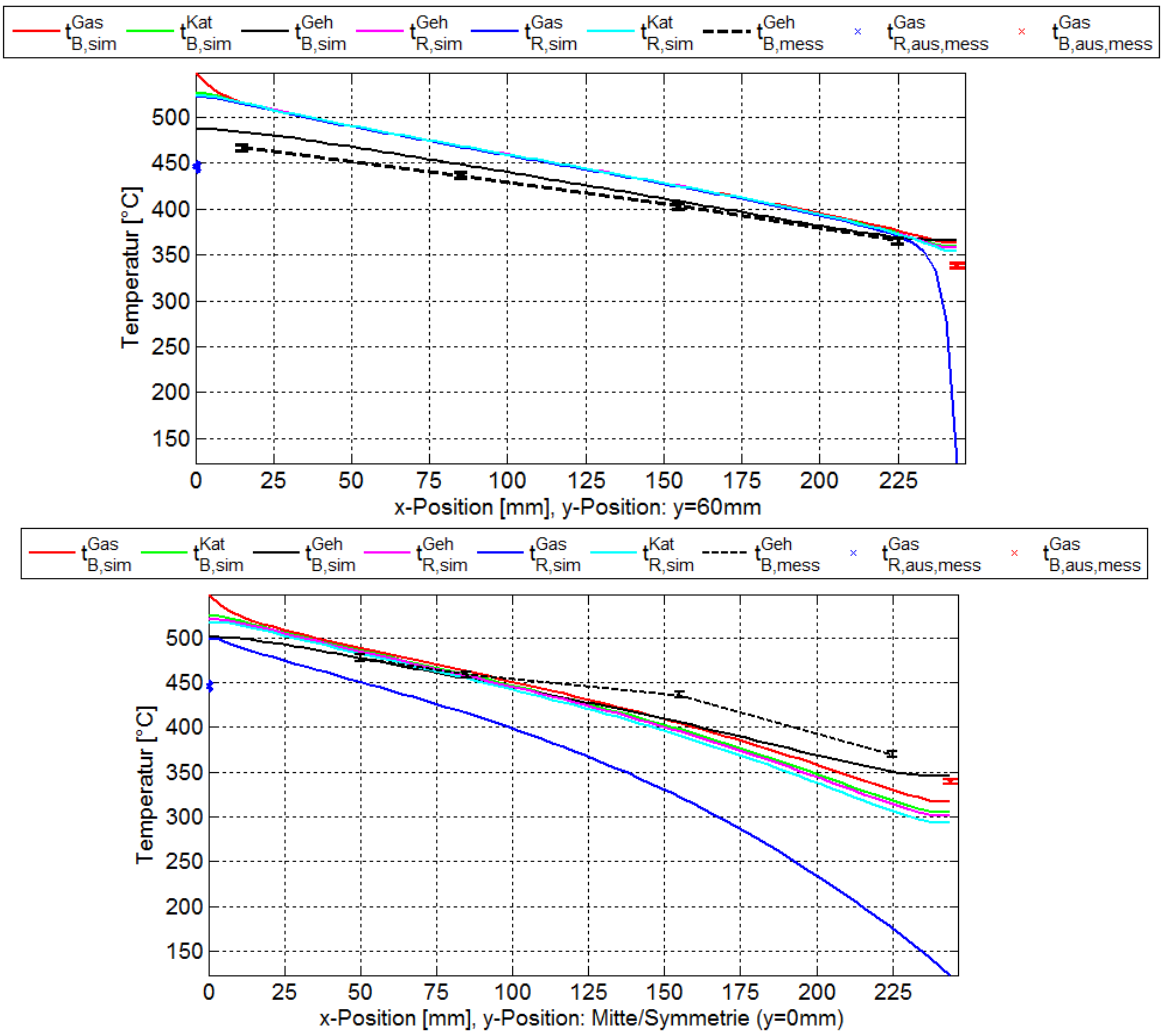


Abbildung 6-13: simulierte Temperaturprofile bei stark ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Deutlich zu erkennen ist der hohe Temperaturgradient des Reformer-Gases in x-Richtung für das Temperaturprofil in y=60mm, obwohl für diesen Bereich keine Strömung innerhalb des Reformers vorliegt (Abbildung 6-10). Erklärt wird dieser Temperaturgradient durch die Randwerte der Gas-Eintrittstemperaturen des Reformers. Die Temperatur auf dem Rand des Reformer-Eintritts wurde für die Simulation als konstant angenommen und liegen in dieser Simulation bei etwa 123°C. Entsprechend der Wärmeleitung des Reformer-Gases entsteht ein Wärmefluss in dem ruhenden Fluid, der den Temperaturgradienten in x-Richtung erzeugt und das Reformer-Gas in den ersten 25mm auf die Temperatur des umgebenden Reformer-Gehäuses und der Reformer-Folienpackung bringt.

Ähnlich zu der in „6.1. Verlustmechanismus“ beschriebenen Problematik der Modellverifikation anhand der Brenner-Austrittstemperatur, ist eine Verifikation des Modells anhand der Reformer-Austrittstemperatur durch die in der Simulation nicht abgebildete und verlustbehaftete Rohranbindung, in der die Austritts-Temperatur des Reformer-Gases experimentell ermittelt wird, nur bedingt möglich. Auch wenn die simulierte Reformer-Gas-Temperatur auf dem Modell-Rand am Austritt des Reformers (x=0mm) eine Differenz gegenüber der gemessenen Austrittstemperatur von 50 bis 75 Kelvin aufweist, ist dies nur eine geringe Leistungsdifferenz aufgrund der vorliegenden geringen Massenströme. In dem in Abbildung 6-13 dargelegten

Fall beläuft sich dieser Wert auf nur circa 11W bis 17W und ist plausibel anhand der Verluste der Rohranbindungen zu erklären.

Für den Bereich der Reformer-Strömung zeigt sich in y=0mm ein Temperaturgradienten von etwa $1{,}54\frac{K}{mm}$, der auf einen relativ flachen Temperaturverlauf des Reformer-Gases führt und für den Gegenstrombetrieb durchaus plausible ist.

Sowohl für y=0mm als auch y=60mm spiegeln die Verläufe der simulierten Brenner-Gehäuse-Temperaturen qualitativ die gemessenen Oberflächentemperaturen wider. Für y=0mm werden die hinsichtlich des Brenners stromaufgelegenen Oberflächentemperaturen auch quantitativ verifiziert, die stromabgelegenen Temperaturen liegen, ähnlich zu denen in „6.1. Verlustmechanismus“ dargestellten Abweichungen, um bis zu 20K unterhalb der gemessenen Oberflächentemperatur. Für y=60mm zeigt das simulierte Oberflächentemperaurprofil des Brenners eine in Richtung des Brenner-Eintritts größer werdende Temperaturdifferenz zu den gemessenen Oberflächentemperaturen.

Eine fundierte Aussage über die Plausibilität der Anströmsituation des Reformers ist an dieser Stelle noch nicht möglich, so dass das Geschwindigkeitsprofil des Reformers im nachfolgenden Schritt auf dem Modell-Rand auf ein relativ gleichmäßiges Profil geändert wird, um sowohl Auswirkungen der Anströmsituation auf das System hinsichtlich der Wärmeübertragung als auch Unterschiede zu dem zuvor gezeigten ausgeprägten Geschwindigkeitsprofil zeigen zu können.

Entsprechend der geänderten Anströmsituation des Reformers und bei gleicher Anströmbedingung des Brenners zeigt die Simulation die in Abbildung 6-14 dargestellten Strömungsfelder.

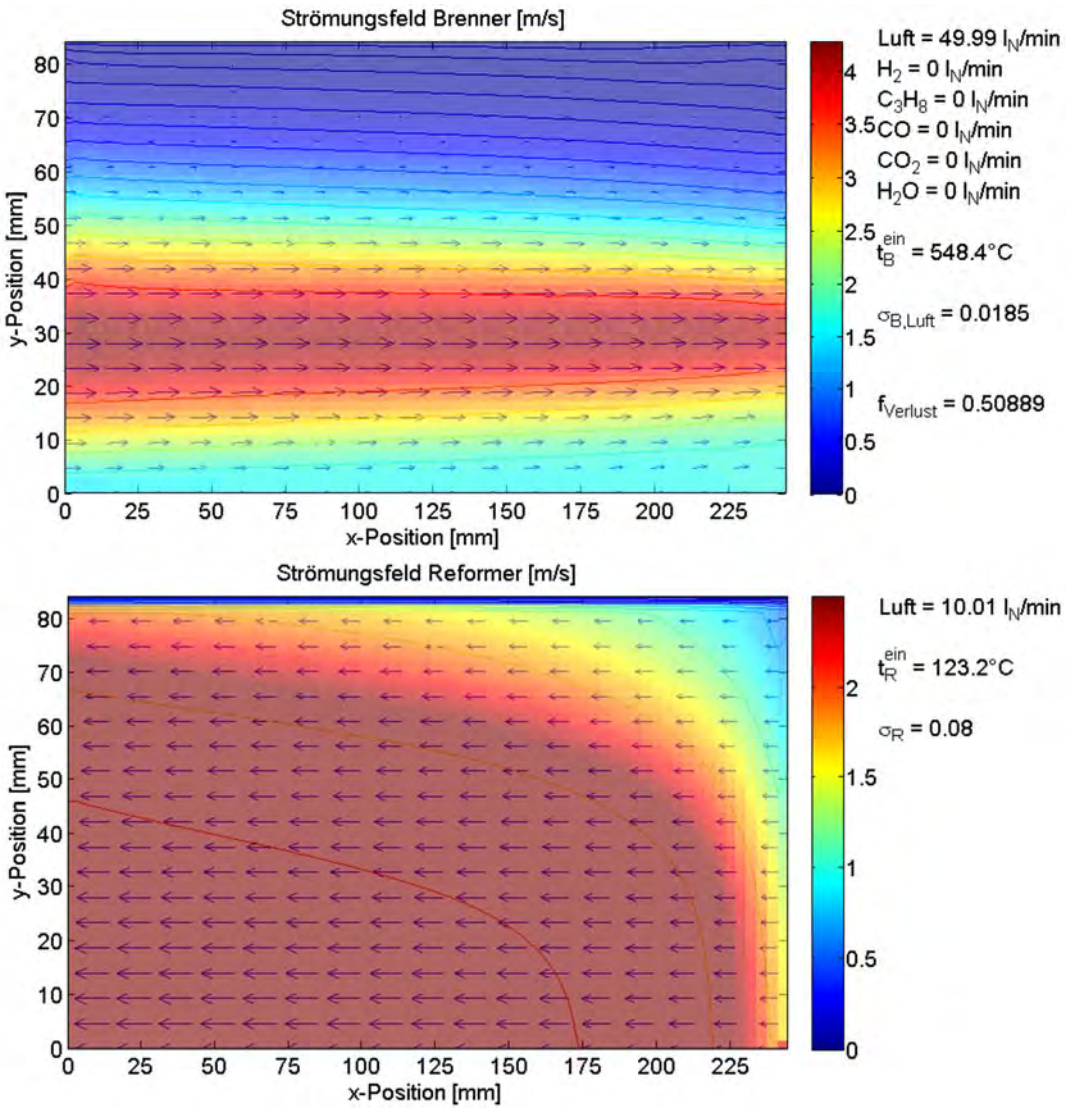


Abbildung 6-14: Strömungsfeld des Brenners und Reformers für eine gleichmäßige Anströmsituation des Reformers

Das deutlich gleichmäßigere Strömungsprofil des Reformers auf dem Rand des Eintritts führt auf ein relativ gleichmäßiges Strömungsfeld des Reformers im Gegenstrombetrieb und ohne Geschwindigkeitskomponenten in y-Richtung.

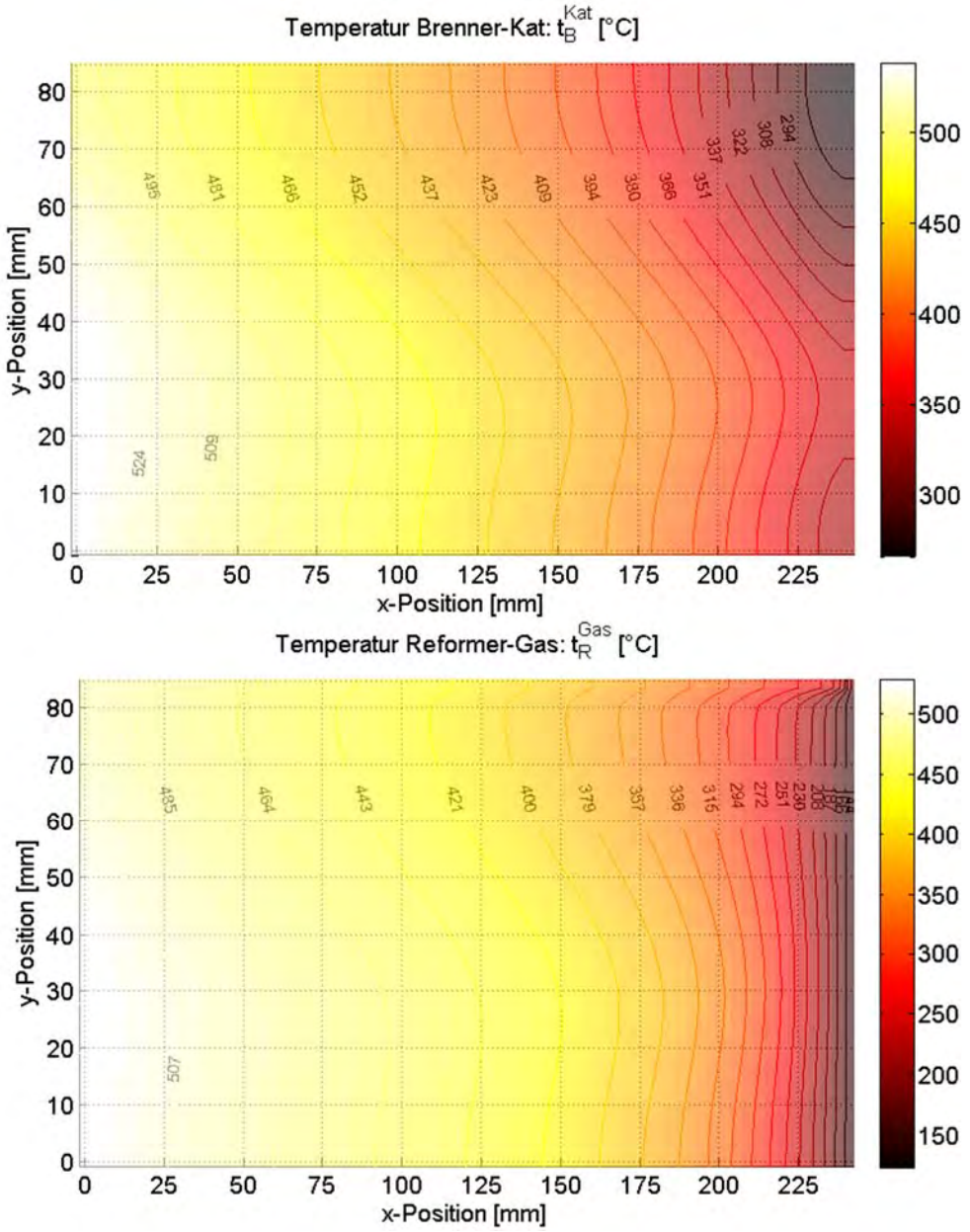


Abbildung 6-15: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Reformer-Gas der Simulation bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers

Der Einfluss der gleichmäßigen Anströmung des Reformers wird in den Temperaturfeldern von Reformer-Gas und Brenner-Gas deutlich. Die Isothermen des Brenners zeigen einen qualitativ ähnlichen Verlauf zu den Isothermen des Reformers und eine gegenüber den in Abbildung 6-11 dargestellten Isothermen deutlich geringere Krümmung, ausgelöst durch einen homogeneren flächenspezifischen Wärmestrom (Abbildung 6-16).

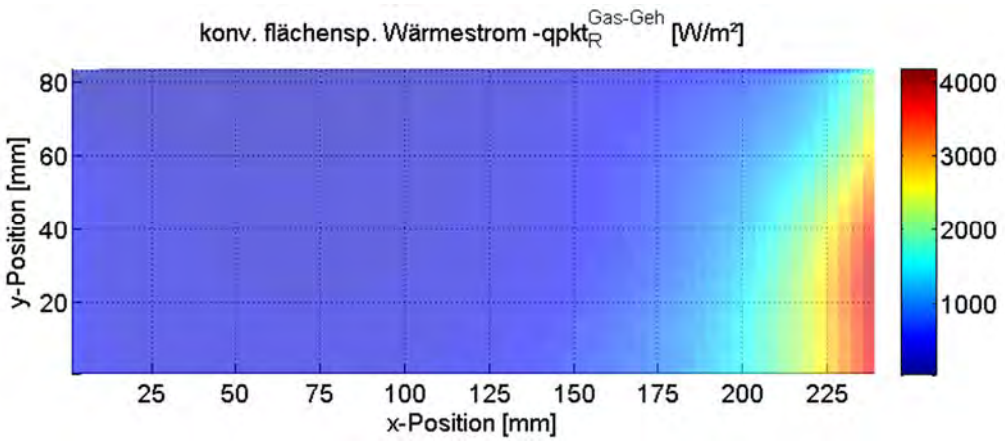


Abbildung 6-16: flächenspezifischer Wärmestrom zwischen Reformer-Gas und Reformer-Gehäuse für ein wenig ausgeprägtes Anströmprofil des Reformers

Dennoch ist gut zu erkennen, dass ein Großteil der Übertragungsfläche (etwa die Hälfte) einen sehr geringen Wärmestrom aufzeigt und hinsichtlich der Wärmeübertragung nur bedingt genutzt wird. Dies spiegelt sich ebenfalls in den Temperaturverläufen der Abbildung 6-17 wider.

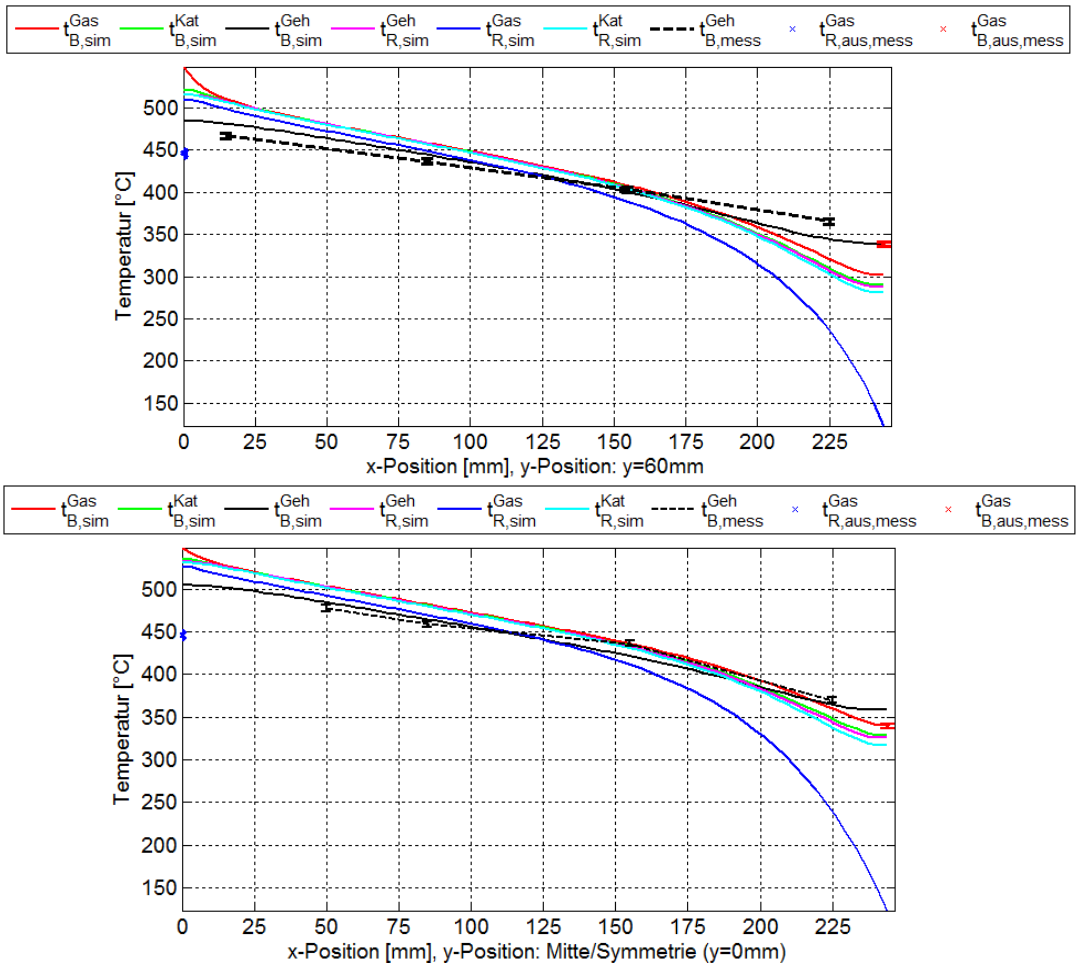


Abbildung 6-17: simulierte Temperaturprofile bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Die Wärmeübertragung zwischen Benner und Reformer findet vorwiegend in der rückwärtigen Hälfte des Brenners ($x > 125mm$) statt. Hier zeigt der Temperaturverlauf des Reformer-

Gases einen für den Gegenstrombetrieb typischen Temperaturverlauf. Für den vorderen Teil des Brenners ($x \leq 125mm$) nimmt die Gas-Temperatur des Reformers nahezu die Temperatur der Reformer-Komponenten an, die das Reformer-Gas umgeben. Die Wärmeübertragung zwischen Reformer und Brenner ist für diesen Bereich nahezu abgeschlossen und die Temperaturverläufe werden fast ausschließlich von den Verlusten des Brenners bestimmt.

Die simulierten Oberflächentemperaturen des Brennergehäuses spiegeln für y=0mm die experimentellen Ergebnisse qualitativ und quantitativ wieder. Lediglich die in x=155mm gelegene Oberflächentemperatur zeigt abermals einen systematisch auftretenden Unterschied zu dem simulierten Verlauf der Brenner-Gehäuse-Temperatur.

Für y=60mm zeigt die simulierte Gehäuse-Temperatur des Brenners einen, gegenüber der experimentell ermittelten Oberflächentemperaturen, leicht geringeren Temperaturgradienten in x-Richtung. Der Verlauf der simulieren Brenner-Gehäuse-Temperatur ähnelt dem in Abbildung 6-13 dargestellten Temperaturverlauf mit stark ausgeprägtem Geschwindigkeitsprofil auf dem Rand des Reformers. Es ist lediglich um einige Kelvin – in negative Temperatur-Richtung – parallel verschoben, hervorgerufen durch die auch dort stattfindende Wärmeübertragung an den integrierten Reformer.

Eine sichere und fundierte Aussage über die Anströmsituation des Reformers auf Basis eines Vergleichs der gemessenen und simulierten Oberflächentemperaturen des Brenners ist aufgrund der Komplexität der Wärmeübertragung zwischen Brenner und Reformer an dieser Stelle nicht möglich, da die Brenner-Gehäuse-Temperaturen in der Simulation wesentlich von der Wärmeübertragung zwischen Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse abhängen. Die Temperatur des Brenner-Gases ist jedoch nur indirekt mit der Temperatur des Reformer-Gases anhand der Wärmeübertragung auf das Reformer-Gehäuse gekoppelt. Der Einfluss der Strömung des Reformers ist demnach auch nur indirekt anhand der Brenner-Gehäuse-Temperatur zu erkennen.

Eine tatsächliche Anströmsituation des Reformers kann an dieser Stelle daher nicht ermittelt werden. Die für die weitere Simulation festgelegte Anströmsituation des Reformers erzeugt das in Abbildung 6-18 dargestellte simulierte Geschwindigkeitsfeld des Reformers.

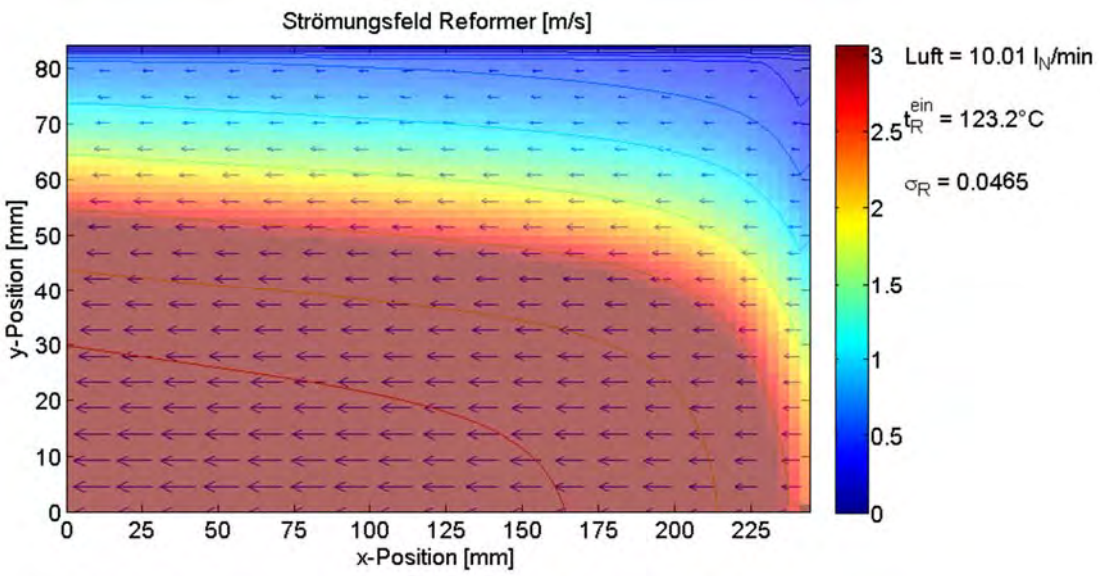


Abbildung 6-18: Strömungsfeld des Reformers für eine angenommene und festgelegte Anströmsituation

6.3. Verbrennung und Wärmeübertragung

Aufgrund der Komplexität hinsichtlich der Modellierung und Simulation von Verbrennungsvorgängen sowie in Anbetracht der zeitlichen Einschränkung dieser Arbeit ist eine Variation der Anströmsituation des Brenner-Brenngases an dieser Stelle nur bedingt möglich. Zudem zeigten sich in der Simulation der Verbrennung starke numerische Fehler in der Abbildung der heterogenen katalytischen Verbrennung während der numerischen Simulation. Die heterogene Katalyse wird als Reihenschaltung von chemischer Reaktionskinetik (geschwindigkeitsbestimmender Schritt für tiefe Temperaturen) und Stofftransport (limitierende Größe für hohe Temperaturen) modelliert, konnte numerisch allerdings nicht einwandfrei umgesetzt werden. Daher wird auf die Beachtung der heterogenen Katalyse an dieser Stelle zu Gunsten einer stabilen numerischen Simulation verzichtet.

Für die Modellverifikation des kombinierten Brenner- und Reformer-Betriebs wurde der Brenner experimentell mit einem Wasserstoff-Luft-Gemisch bei Temperaturen um 550°C am Eintritt des Brenners betrieben. Der Betrieb mit Synthesegas, das dem AOG aus Tabelle 1-1 entspricht, mit einem Propan-Luft-Gemisch oder einem anderweiten Synthesegas-Luft-Gemisch wurde aus Zeitgründen nicht weitergehend untersucht und obliegt nachfolgenden Arbeiten. Die Untersuchungen anhand von Wasserstoff-Luft-Gemischen unterschiedlicher Konzentrationen zeigten untereinander ähnliche Verhaltensweisen, so dass hier repräsentativ die Modellverifikation anhand einer ausgewählten experimentellen Untersuchung gezeigt wird.

Der Brenner wurde mit einem global überstöchiometrischen Wasserstoff-Luft-Gemisch ($\dot{V}_{B,Luft} \approx 50\frac{l_N}{min}, \dot{V}_{B,H_2} \approx 0{,}7\frac{l_N}{min} \rightarrow \lambda \approx 30, \sim 130 W_{H_2}$) mit einer Eintrittstemperatur von etwa 565°C angeströmt. Dem Reformer wird am Eintritt ein Luftvolumenstrom von ca. $10\frac{l_N}{min}$ mit etwa 129°C zugeführt.

Abbildung 6-19 zeigt das Strömungsfeld der Simulation mit angenommener relativ breiter Anströmung des Brenners mit Brenngas und fest vorgegebenem Anströmprofil von Brenner-Luft und Reformer.

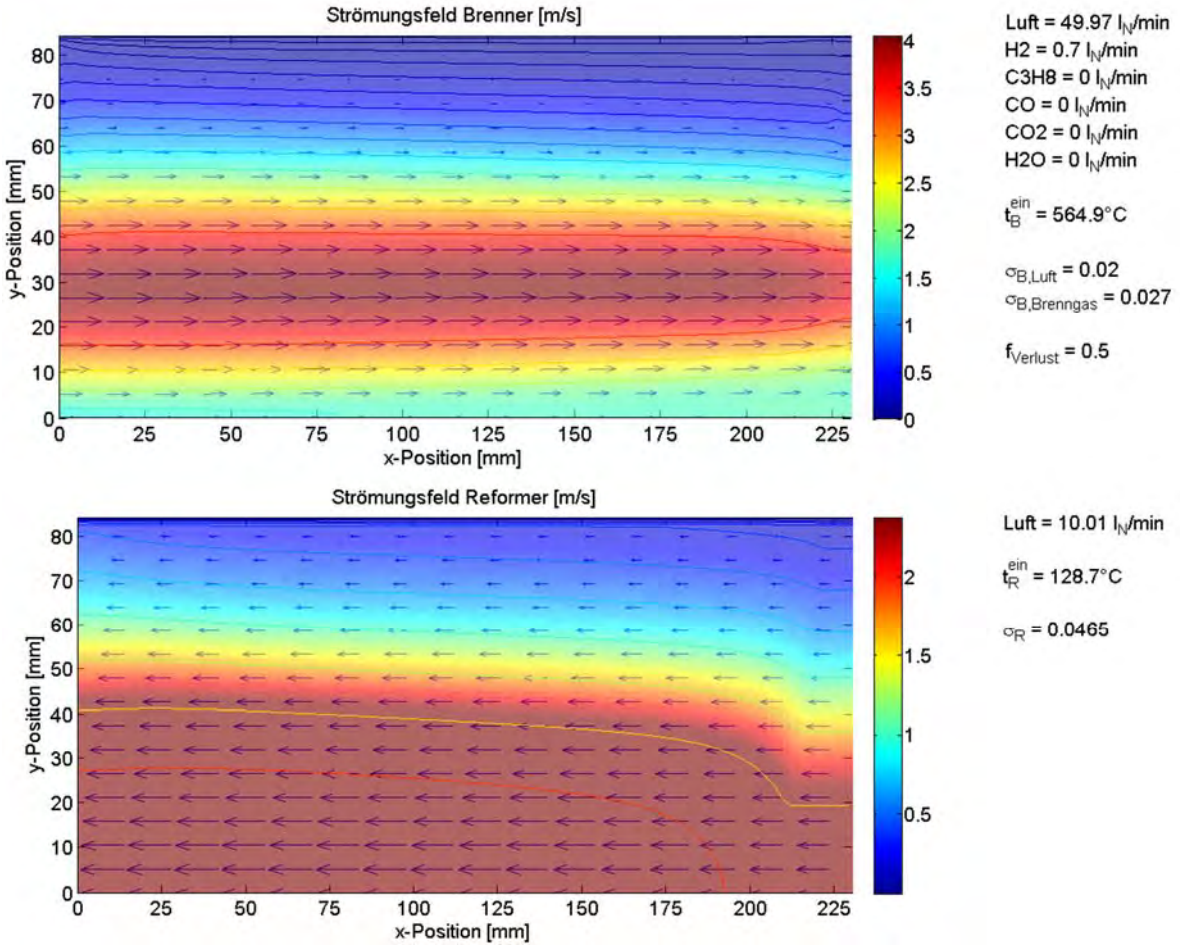


Abbildung 6-19: Strömungsfeld des Brenners und Reformers für eine relativ gleichmäßige Anströmsituation des Brenners mit Brenngas

Die Überlagerung der Anströmsituation von Brenner-Luft und Brenner-Brenngas ist anhand des Strömungsfeldes des Brenners nicht signifikant zu erkennen, da der Brennstoffstrom eine gegenüber dem Luftstrom deutlich untergeordnete Größenordnung aufweist. Das Geschwindigkeitsfeld des Brenners zeigt zudem eine geringe Reaktion auf die Verbrennung des Wasserstoffs, der bei vollständigem Umsatz eine Leistung von lediglich 130W erzeugt und die damit verbundene geringe Dichteänderung kaum Einfluss auf die Impulserhaltung ausübt.

Eine Auswirkung der angenommenen Anströmsituationen von Brennstoff und der zuvor festgelegten Luft-Anströmung des Brenners zeigt sich im simulierten Konzentrationsfeld und dem damit verbundenen Stoffmengenanteil von Wasserstoff (Abbildung 6-20).

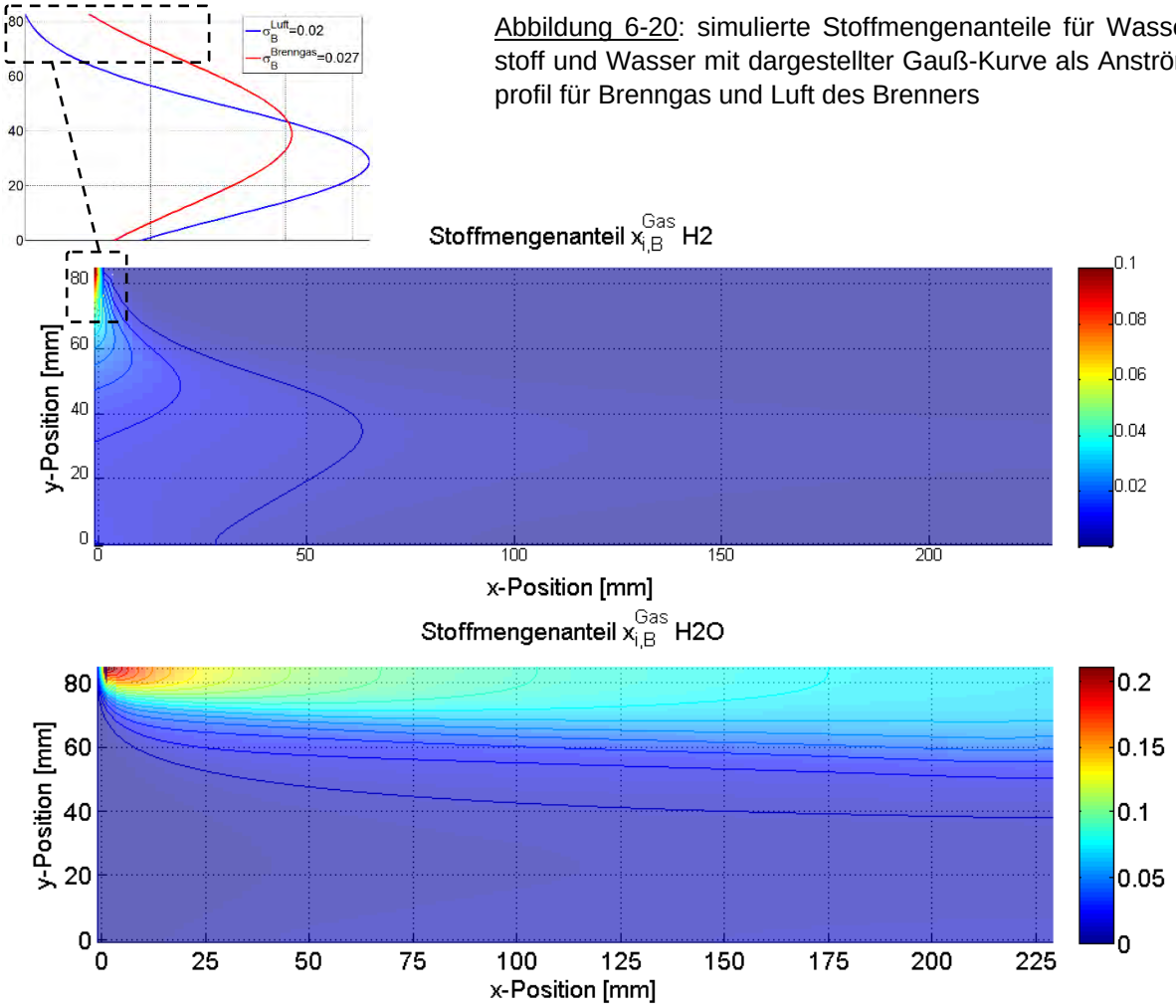


Abbildung 6-20: simulierte Stoffmengenanteile für Wasserstoff und Wasser mit dargestellter Gauß-Kurve als Anströmprofil für Brenngas und Luft des Brenners

Für diese angenommene Anströmsituation zeigt die Simulation im Bereich des Brenner-Eintritts (x=0mm) und in Richtung der Brenner-Wand (y=84mm, in Abbildung 6-20 markiert) einen hohen Stoffmengenanteil an Wasserstoff, hervorgerufen durch die gegenüber des Brenngases stärker ausgeprägte Anströmsituation der Brenner-Luft. Da das Anströmprofil der Brenner-Luft in diesem Bereich kaum noch einen Stoffstrom und damit eine Eintrittsgeschwindigkeit der Luft in den Brennraum erzeugt, sieht das Anströmprofil des Brennstoffs einen hierzu deutlich abweichenden und vorhandenen Wasserstoff-Stoffstrom vor.

Der vorhandene Stoffmengenanteil an Wasser zeigt eine plausible numerische Umsetzung der homogenen Gasphasen-Verbrennung von Wasserstoff. Auf dem Eintritts-Rand des Brenner-Modells liegt der Stoffmengenanteil von Wasser bei null (Randbedingung). Im Bereich der Verbrennung zeigt die Simulation eine Reduzierung des Wasserstoffanteils und eine Erhöhung des Wasseranteils, die vom ausgebildeten Strömungsfeld des Brenners weiter entlang der x-Richtung transportiert werden. Die ausgeprägte Randschicht des Strömungsfelds des Brenners führt dazu, dass außerhalb der Kernströmung ein erhöhter Wasseranteil vorliegt, der konvektiv nur langsam transportiert wird.

In der Simulation zeigt sich die homogene Verbrennung neben den Änderungen der Stoffmengenanteile ebenfalls im Temperaturfeld, das für das Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse in Abbildung 6-21 dargestellt ist.

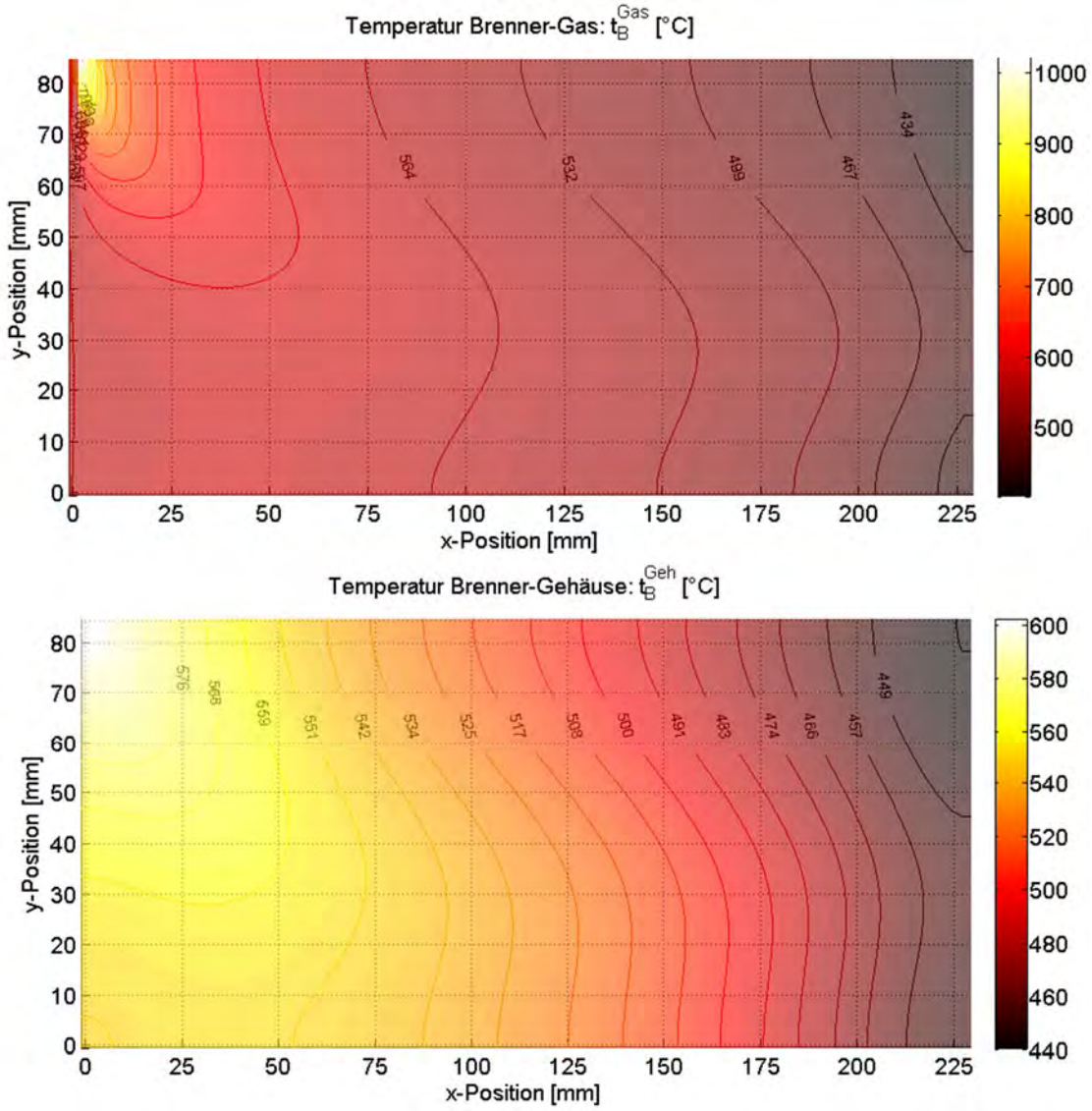


Abbildung 6-21: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse für eine relativ gleichmäßige Anströmsituation des Brenners mit Brenngas

Besonders im Bereich des Brenner-Eintritts in Richtung der Brenner-Wand ist eine deutliche exotherme Reaktion zu erkennen, die zu einem stark lokal ausgeprägten Verlauf der Isothermen führt und einen Hotspot in der Verbrennung identifiziert. Die Verläufe zeigen sich in abgeschwächter Form ebenfalls im Temperaturfeld des Brenner-Gehäuses unter dem Einfluss der Wärmeübertragung und der Wärmeleitung des Gehäuses und führen auf die in Abbildung 6-22 abgebildeten Temperaturprofile.

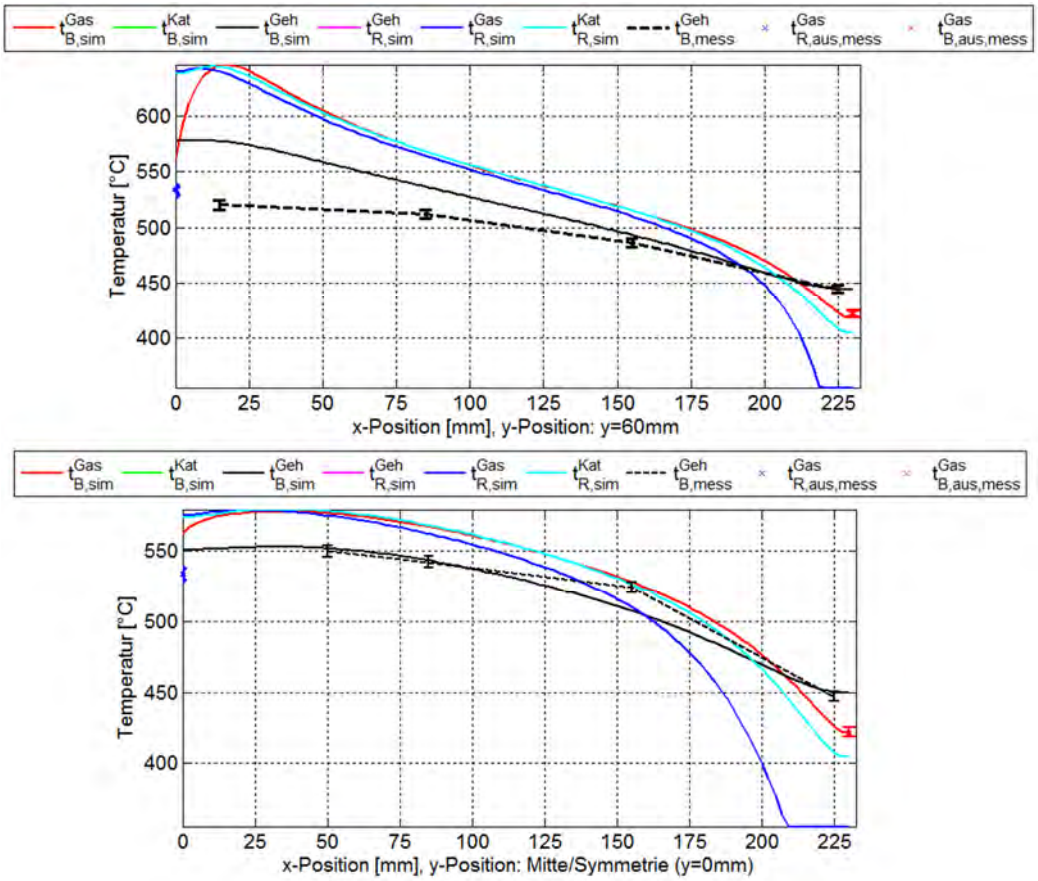


Abbildung 6-22: simulierte Temperaturprofile bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Brenner-Brenngases mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Für y=0mm zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Simulation mit den experimentell ermittelten Oberflächentemperaturen, sowohl qualitativ als auch quantitativ. Lediglich für x=155mm ist hier, wie schon zuvor, eine systematisch auftretende Abweichung der Simulation zur Messung zu erkennen.

Für y=60mm wird deutlich, dass die simulierte Oberflächentemperatur lediglich im stromabwärts gelegenen Bereich des Brenners mit den experimentellen Daten übereinstimmt. Die stark lokal auftretende Reaktion führt zu dem ausgeprägten Temperaturprofil des Brenner-Gases. Die hohe Brenner-Gas-Temperatur führt zu einer erhöhten Wärmeübertragung an die umgebenden Komponenten und damit auf die erhöhte Oberflächentemperatur des Brenners.

Obwohl die Simulation, wie eingangs erwähnt, keine numerische Abbildung der heterogenen Katalyse realisiert, ist eine Aussage über eine mögliche katalytische Verbrennung von Wasserstoff und die Plausibilität der Simulation an dieser Stelle dennoch möglich. Zu diesem Zweck wird die dimensionslose Hatta-Zahl der Spezies i (Ha_i) definiert. Sie zeigt, ob die Stoffübertragung durch die Grenzschicht des Katalysators bis hin zur Katalysator-Oberfläche stattfinden kann oder ob in der Grenzschicht bereits ein Großteil der chemischen Reaktion stattfindet. Die Hatta-Zahl beschreibt das Verhältnis zwischen Reaktionsgeschwindigkeit in der Reaktionsphase (hier: bezogen auf die homogene Gasphasen-Reaktion) zur Stofftransportgeschwindigkeit durch die Phasengrenze (hier: hydrodynamische Grenzschicht des Katalysators) für Reaktionen, die mit Stofftransportvorgängen gekoppelt sind: [6]

$$Ha_i = \frac{1}{\beta_i} \cdot \sqrt{\frac{2}{n_i+1} \cdot k_{f,i} \cdot (c_i)^{n_i-1} \cdot D_i} \tag{6.2}$$

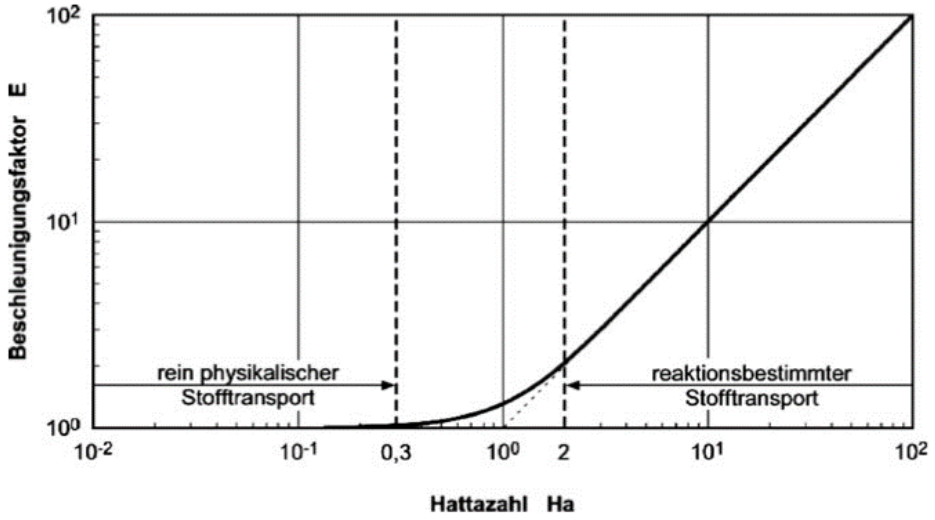


Abbildung 6-23: Zusammenhang zwischen Beschleunigungsfaktor und Hatta-Zahl [7]

Die Hatta-Zahl wird in dieser Arbeit auf die Reaktionsgeschwindigkeit der homogenen Gasphasen-Verbrennung bezogen, um den Einfluss des Katalysators in der homogenen Verbrennung zu identifizieren.

Für langsame Reaktionen gilt eine Hatta-Zahl von $Ha < 1$ (in der Praxis $Ha < 0{,}3$ [6]). Die Reaktion in der Gasphase ist deutlich langsamer als die Stoffübertragung durch die Grenzschicht des Katalysators, die chemische Reaktionsgeschwindigkeit des Katalysator zeigt auf das Gesamt-Umsatzverhalten des Brenners einen deutlichen Einfluss.

Im Übergangsbereich ($0{,}3 \leq Ha < 3$) verläuft die Reaktion in etwa so schnell wie der Stoffübergang. Ein Teil der reaktiven Spezies reagieren bereits in der Grenzschicht des Katalysators.

Im Bereich von $Ha > 3$ ist die Reaktionsgeschwindigkeit deutlich schneller als die Stoffübertragung. Die diffundierenden und reaktiven Komponenten reagieren bereits in der Grenzschicht, die dabei stattfindende Reaktion entfernt aus dem Grenzfilm die reaktive Spezies und führt dazu, dass die Konzentration der reaktiven Spezies auf dem Katalysator zu Null wird.

Für die oben gezeigte Untersuchung und der in der Simulation angenommen Anströmkonfiguration weist die Simulation die in Abbildung 6-24 dargestellte Hatta-Zahl auf.

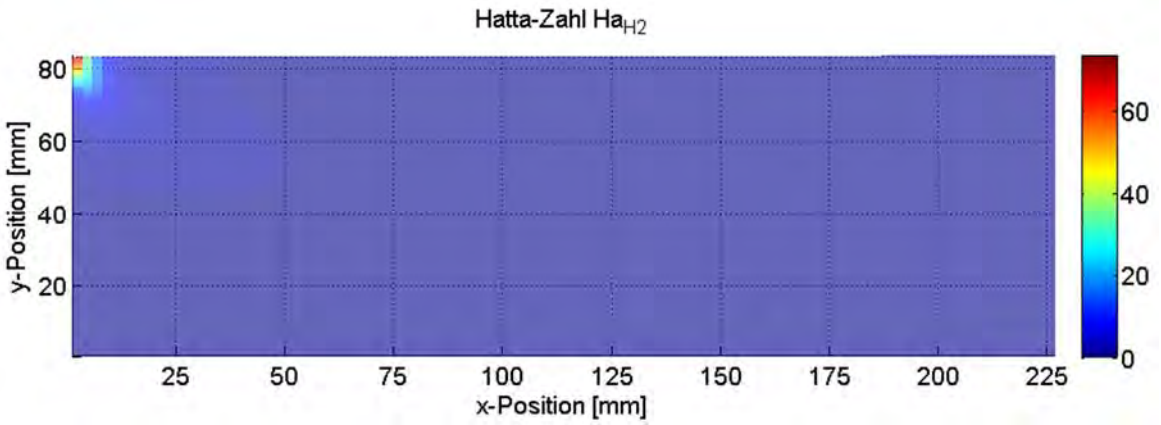


Abbildung 6-24: Hatta-Zahl

Besonders im Eintrittsbereich des Brenners (x=0mm, y>70mm) liegt $Ha \gg 3$ vor, so dass für diese Simulation unter den Anström-Randbedingungen keine heterogene Verbrennung des Brenners zu erwarten ist und die katalytische Umsatzgeschwindigkeit einer Limitierung durch den Stoffübergang von Gas auf Katalysator unterliegt. Die homogene Gasphasen-Verbrennung zeigt eine starke Dominanz im Umsatzverhalten des Brenners.

Anhand der in Abbildung 6-22 aufgeführten Temperaturprofile und der festgestellten zum Teil erheblichen Temperaturunterschiede zwischen Simulation und Messung ist davon auszugehen, dass die Anströmsituation des Brenners hinsichtlich des Brenngases ein stärker ausgeprägtes Profil aufweist, so dass die in Richtung der Wand stattfindende Verbrennung stärker in Richtung der Symmetrie-Ebene (y=0mm) rückt. Das entsprechende Konzentrationsprofil bei sonst gleichen Randbedingungen ist in Abbildung 6-26 dargestellt. Auf die Abbildung der Strömungsfelder wurde verzichtet, da der geringe Brennstoffstrom einen nur kaum merklichen Einfluss auf die Einströmgeschwindigkeit des Brenners zeigt.

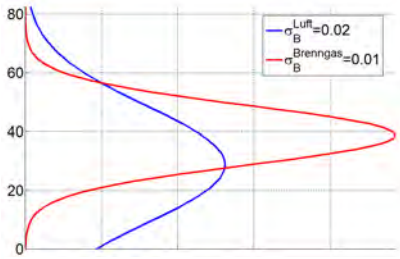


Abbildung 6-25: Anströmprofil des Brenners mit Brenngas und Luft

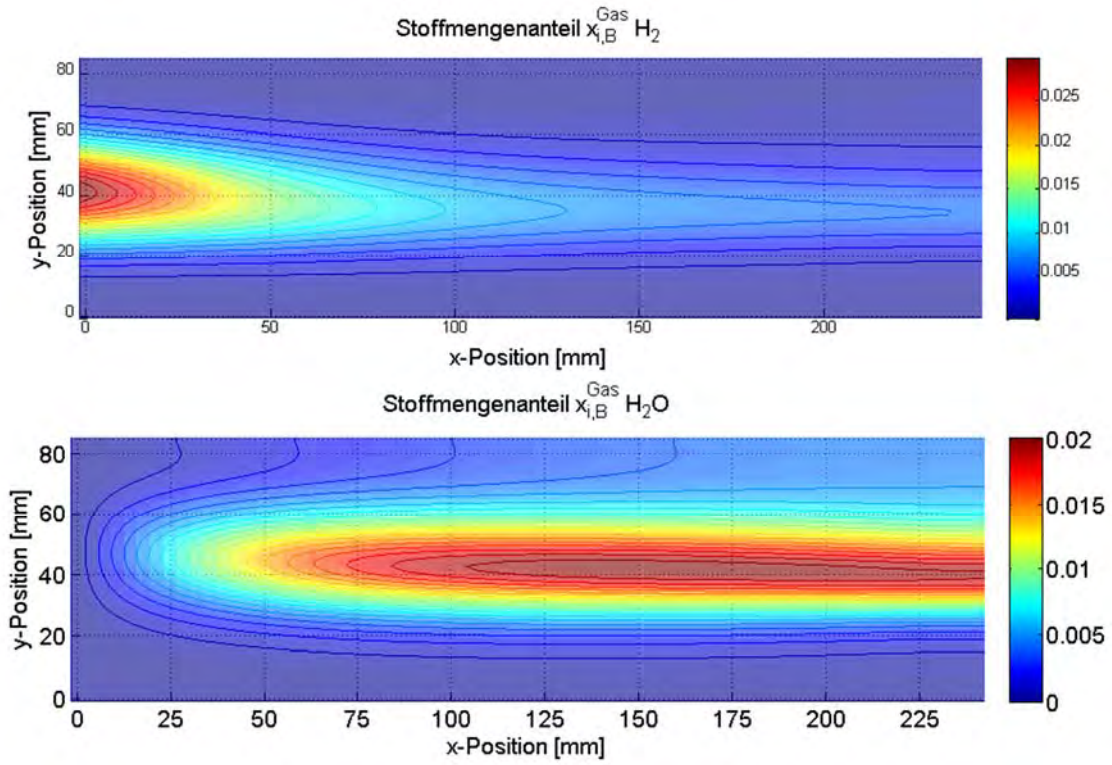


Abbildung 6-26: simulierte Stoffmengenanteile für Wasserstoff und Wasser

Anhand Wasserstoff-Stoffmengenanteile ist die Anströmsituation des Brenngases deutlich zu erkennen. Der Stoffmengenstrom Wasserstoff wird anhand des Strömungsfelds des Brenners konvektiv transportiert, die homogene Gasphasenverbrennung von Wasserstoff erzeugt den dargestellten Wasseranteil als Folge der Wasserstoff-Verbrennung und wird anhand der Brenner-Strömung in das Modellgebiet getragen.

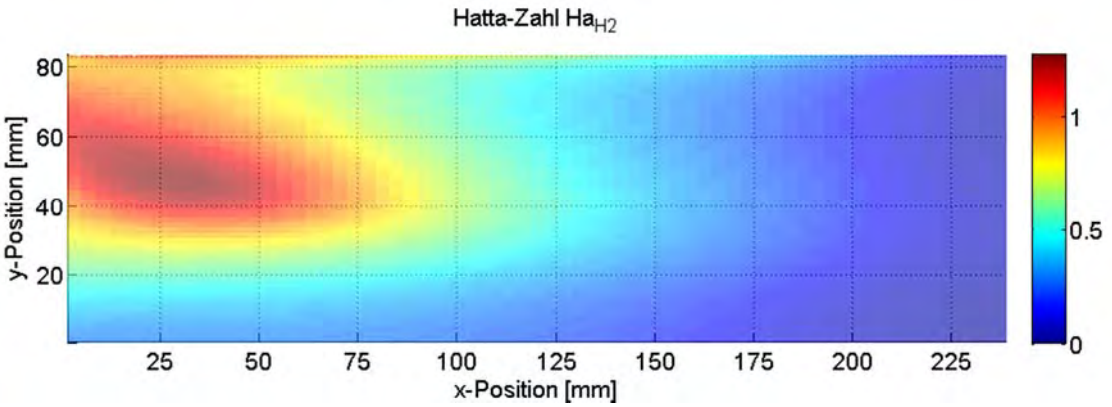


Abbildung 6-27: Hatta-Zahl für

Im Bereich des Brenner-Eintritts und des Wasserstoff-Umsatzes zeigt sich in der Simulation eine Hatta-Zahl von etwa 1,5. Die homogene Gasphasen-Reaktion ist in etwa so schnell wie der Stoffübergang in der Grenzschicht des Katalysators, so dass eine Beeinflussung der heterogenen Katalyse von Wasserstoff nicht mehr auszuschließen ist. Daher ist möglich, dass der in Abbildung 6-26 gezeigte Verlauf der Stoffmengenanteile unter dem Einfluss der heterogenen Katalyse einer schnelleren Umsatzgeschwindigkeit des Wasserstoffs unterworfen ist und eine kürzere Reaktionsfront bezüglich des Wasserstoff-Anteils zeigt.

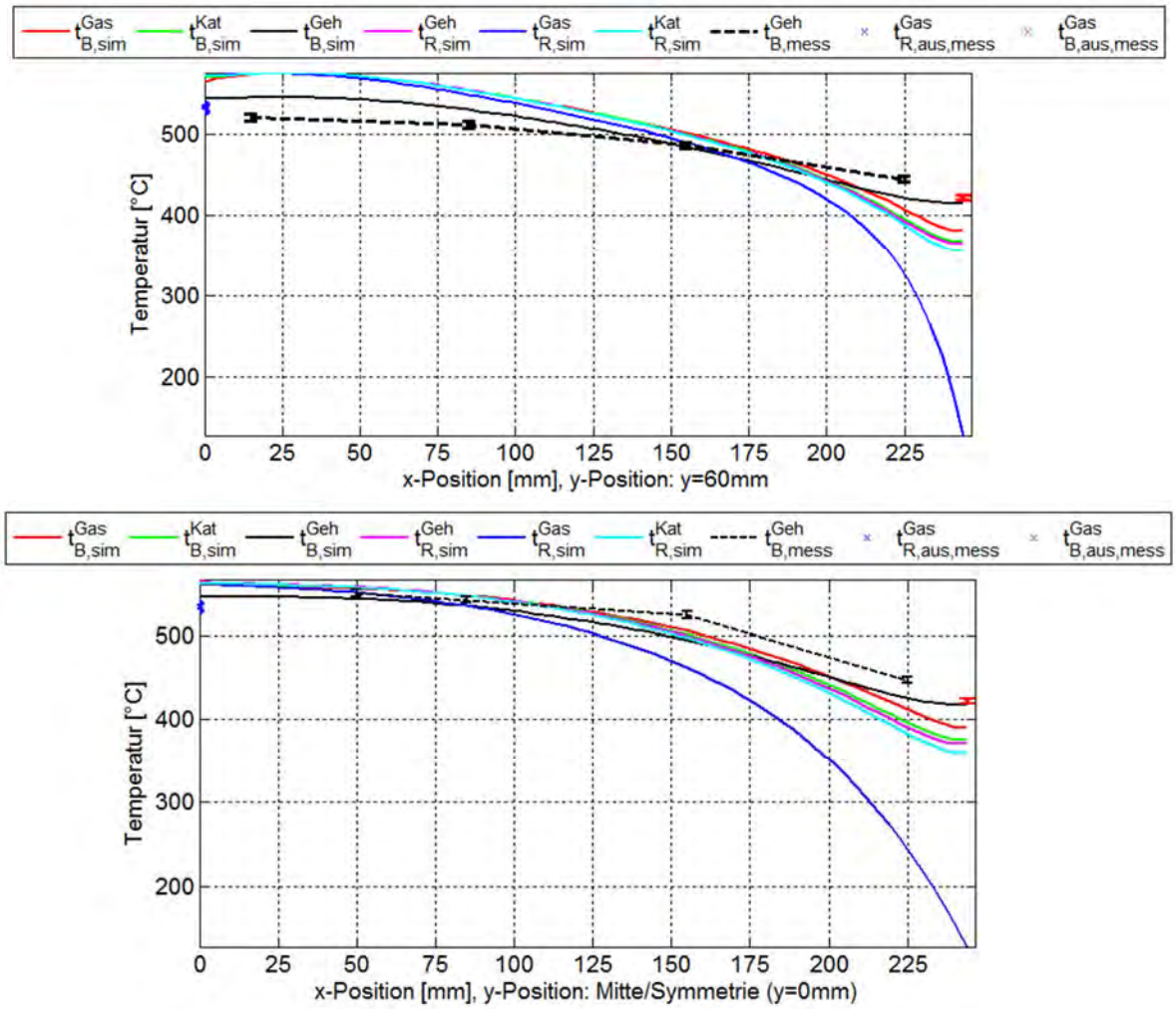


Abbildung 6-28: simulierte Temperaturprofile bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenner-Brenngases mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen

Die ermittelten Oberflächentemperaturen sowie die simulierte Brenner-Gehäuse-Temperatur zeigen für diese Art der Anströmung und der Vernachlässigung der heterogenen Katalyse eine qualitativ gute Übereinstimmung. Für y=0mm werden die stromaufwärts des Brenners gelegenen Temperaturen zudem quantitativ verifiziert. Das simulierte Temperaturprofil des Brenner-Gehäuses für y=60mm zeigt eine gegenüber dem gemessenen Temperaturen einen leicht größeren Temperaturgradienten in x-Richtung.

Obwohl die Hatta-Zahl den Einfluss des Katalysators nicht ausschließt, zeigt die numerische Simulation gute Übereinstimmungen mit den experimentellen Daten für ein stark ausgeprägtes Brenngas-Anströmprofil. Dies lässt darauf schließen, dass die katalytische Verbrennung von Wasserstoff unter den gezeigten nur eine untergeordnete und stofftransportlimitierte Rolle bezüglich des Umsatzverhaltens des Brenners spielt.

Die numerische Simulation zeigt auf Basis der experimentellen Untersuchung und der damit verbundenen Modellverifikation für die Anströmsituation sowohl von Brenngas als auch Luft des Brenners ausgeprägte Anströmprofile. Diese modellgestützte Aussage kann durch die festgestellten Materialverfärbungen des Brenner-Gehäuses bekräftigt.

Alle Gehäuse-Komponenten des Brenners lagen zu Beginn der Erprobung mit sandgestrahlter und entsprechend metallischer Oberfläche vor. Der Brenner wurde nach den ersten etwa fünf Betriebsstunden bei ca. 600°C demontiert, um Aussage über den Brennraum (Rußablagerungen, sichtbare Degradation der Katalysatoren, Stabilität der Konstruktion unter thermischen Spannungen, etc.) anhand einer einfachen Sichtprüfung treffen zu können.

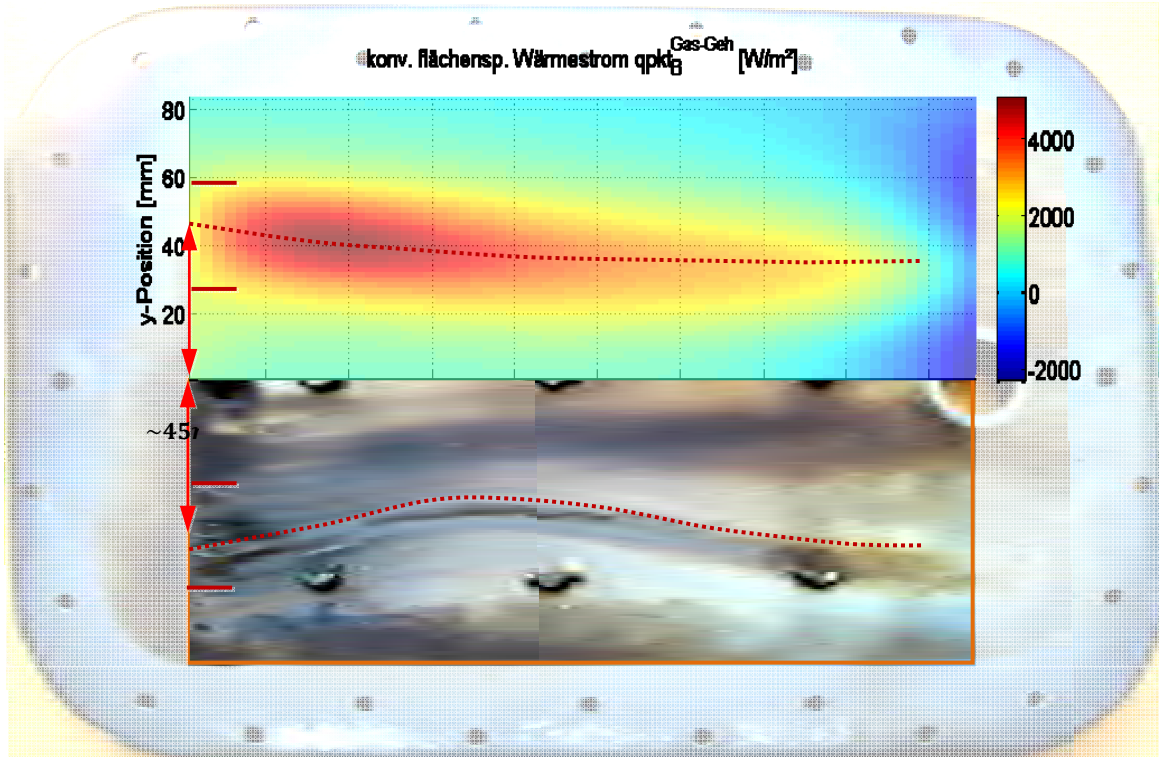


Abbildung 6-29: Modellbereich des Brenner-Gehäuses (Deckel, orange markiert) nach ca. 5h Betrieb bei etwa 600°C anhand Wasserstoff-Propan-Luft-Gemisch sowie konvektive Flächenbelastung der numerischen Simulation durch Wasserstoff-Luft-Betrieb des Brenners bei ca. 560°C Eintrittstemperatur

Zu erkennen ist in Abbildung 6-29 eine deutliche thermische Belastung der Gehäuse-Oberfläche des Brenners (Brenner-Deckel) in Richtung des Brennraums des Brenners, der Bereich des mathematischen Modells ist hierzu hervorgehoben. Gut zu erkennen ist der Verlauf des Brenngases auf der Gehäuse-Oberfläche, das während der Verbrennung und die damit verbundenen Wärmeübertragung an das Brenner-Gehäuse eine entsprechende Materialverfärbung des Brenner-Materials hervorrief. Besonders im Eintrittsbereich wird die Lage der Anströmung des Brenngases deutlich, die in der numerischen Simulation qualitativ ermittelt wurde und anhand der Materialverfärbung quantitativ weiter verifiziert wird. Die dargestellte konvektive Flächenbelastung des Brenner-Gehäuses durch die Wärmeübertragung zwischen Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse aufgrund des simulierten Strömungsfelds des Brenners zeigt in der Simulation einen Verlauf, der der Materialverfärbung und die damit verbundene thermische Belastung des Brenner-Deckels qualitativ ähnelt, jedoch zum Teil stärker ausgeprägt ist.

Sowohl anhand der Modellverifikation durch experimentell ermittelte Oberflächentemperaturen des Brenner-Gehäuses als auch dem Vergleich der konvektiven Flächenbelastung mit den thermisch begründeten Materialverfärbungen kann durch die numerische Simulation

gezeigt werden, dass ein stark ausgeprägtes Anströmprofil der Geschwindigkeit des Brenngases am Eintritt in den Brennraum vorliegt.

Die bisherigen Entwicklungen in Richtung einer gleichmäßigen Anströmsituation zeigen daher weiter Optimierungspotential und sollten sowohl Brenngas- als auch Luft-seitig erfolgen, denn für eine gleichmäßigere Brenngas-Anströmung gegenüber der Luft-Anströmung zeigt die numerische Simulation in dieser Arbeit eine mögliche Hotspot-Bildung in Richtung der Brenner-Wand am Eintritt des Brenners.

7. Zusammenfassung und Ausblick

Für die Entwicklung des Brenners mit integriertem Reformer wurde eine Anströmsituation entwickelt, die sowohl eine gleichmäßige Anströmung des Brenners als auch eine Sicherung gegen Flammenrückschlag darstellt.

Die numerische Simulation wurde anhand ausgewählter experimenteller Untersuchungen des Brenners bezüglich der Anströmsituation von Luft und Brenngas des Brenners verifiziert. Sowohl die Ergebnisse der Simulation als auch die experimentellen Erprobungen zeigen hinsichtlich dieser Anströmsituationen mögliches Optimierungspotential des Brenners. Die Modellverifikation anhand experimentell erhobener Messdaten sowie eine festgestellte Materialverfärbung aufgrund lokaler Wärmebelastungen des Brenner-Gehäuses in der Simulation und in der experimentellen Erprobung zeigten lokal ausgeprägte Anströmprofile der Brenner-Luft und des Brenner-Brenngases entlang der Anströmeinheit des Brenners. Zu Gunsten eines optimierten Brennstoff-Luft-Gemisches ist eine Weiterentwicklung der Anströmeinheit des Brenners sinnvoll, sollte jedoch sowohl Brenngas-seitig als auch Luft-seitig erfolgen, da die Simulation bei optimierter Brenngas-Anströmung ohne Anpassung der Anströmsituation der Luft mögliche Hotspot-Bildung im Bereich des Brenner-Eintritts in Richtung des äußeren Brenner-Gehäuses zeigt.

Sowohl experimentell als auch in der numerischen Simulation wurde eine gute Wärmeübertragung des Brenners an den integrierten Reformer festgestellt. Auch ohne eine Darstellung einer internen Dampfreformierung konnte eine Wärmeübertragungsleistung von etwa 140W dargestellt werden die dazu führt, dass die Austrittstemperatur des Reformer-Volumenstroms nahezu die Eintrittstemperatur des Brenners erlangt.

Für den instationären Betrieb wurde eine Aufheizsystematik entwickelt, die durch eine kombinierte Wasserstoff- und Propan-Verbrennung einen rußfreien und schadstoffarmen Betrieb mit einer Brennstoffleistung von etwa 1,5kW ermöglichte.

Das in dieser Arbeit dargestellte und entwickelte Modell des Brenners und des integrierten Reformers zeigt sowohl bezüglich der numerischen Stabilität als auch der physikalischen Plausibilität gute Ergebnisse und sollte in folgenden Arbeiten fortgesetzt werden. Die gewissenhafte Herleitung der Modellgleichungen, die detaillierte Betrachtung des Systems und die numerisch sinnvolle Umsetzung aller dargestellten Modellgrößen zeigten einen guten Erfolg in der Modellverifikation anhand ausgewählter experimenteller Untersuchungen.

Die Entwicklungs- und Erprobungs-Arbeiten führten auf ein kompaktes Brenner-Reformer-System mit guter Wärmeübertragung und hoher Leistungsdichte, dass hinsichtlich der Anströmsituation weiteres Optimierungspotential zeigt.

8. Literaturverzeichnis

[1] Nordhaus, H.: (Mardorf, L.; Heiker, M., HS Osnabrück) Theoretische und experimentelle Untersuchung eines katalytischen Nachbrenners zur Propanreformierung für ein autarkes SOFC-Brennstoffzellensystem kleiner Leistung. Hochschule Osnabrück - Labor für Angewandte Thermodynamik, Bachelorarbeit SoSe 2011.

[2] Stephan, K. und Baehr, H.: Wärme- und Stoffübertragung. Bochum/Stuttgart, Springer-Verlag, 2008.

[3] Croce, R.: Ein paralleler, dreidimensionaler Navier-Stokes-Löser für inkompressible Zweiphasenströmungen mit Oberflächenspannung, Hindernissen und dynamischen Kontaktflächen. Essen, Universität Bonn - Institut für Angewandte Mathematik, 2002.

[4] Löwe, A.:, Chemische Reaktionstechnik mit MATLAB und SIMULINK. Himmelstadt, WILEY-VCH Verlag GmbH, 2001, p. 390.

[5] Baumann, W.W., Bunge, U., Frederich, O., Schatz, M. und Thiele, F.: Finite-Volumen-Methode in der Numerischen Thermofluiddynamik. Technische Universität Berlin - Institut für Strömungsmechanik und Technische Akustik, 2006.

[6] Warnecke, H.: Chemische Reaktionstechnik - Stoffübergang mit chemischer Reaktion, Paderborn. Universität Paderborn - Department Chemie - Technische Chemie und Chemische Verfahrenstechnik.

[7] Kraume, M.: Transportvorgänge in der Verfahrentechnik: Grundlagen und Apparative Umsetzungen. Berlin, Springer Vieweg, 2012.

[8] Heiker, M.: (Mardorf, L.; Reike, M., HS Osnabrück) Experimentelle Untersuchung und mathematische Modellbildung eines Wasserstoff-Propan-Synthesegas-Brenners. Hochschule Osnabrück - Labor für Angewandte Thermodynamik, Master Thesis SoSe 2013.

9. Tabellen- und Abbildungsverzeichnis

Tabelle 1-1: Brennstoff-Zusammensetzung des Brenners (instationär und stationär) 3

Tabelle 2-1: experimentell ermittelte Widerstandsparameter 6

Tabelle 3-1: verwendete MFC 20

Tabelle 3-2: Messtechnik zur Abgas-Analyse 24

Tabelle 6-1: Oberflächentemperaturen bezüglich der experimentellen Modell-Verifikation 37

Abbildung 1-1: Fließbild des SOFC-Systems (Stationärbetrieb) 2

Abbildung 1-2: planare, thermisch hochintegrierte Bauweise des SOFC-Systems (3D-CAD-Darstellung) 2

Abbildung 2-1: Katalysator in Triholed-Geometrie 4

Abbildung 2-2: Rapid-Prototyping-Modell der Fa. Elster Kromschröder – links: geordnete Packung; rechts: zufällige Schüttung 5

Abbildung 2-3: Prüfstand der Fa. Elster Kromschröder zur Ermittlung der Druckverluste 5

Abbildung 2-4: Ergebnisse der Druckverlust-Messungen 6

Abbildung 2-5: Extrapolation von Druckverlusten bei stationären Betriebsbedingungen (825°C, 5,2l_N/min AOG und 70l_N/min Luft) 7

Abbildung 4-1: 3D-CAD-Schnittdarstellung des Nachbrenners mit integriertem Reformer 10

Abbildung 4-2: CAD-Schnittdarstellung des Brenners mit integriertem Reformer 11

Abbildung 4-3: Brenner-Konstruktion des Labors für Angewandte Thermodynamik 12

Abbildung 4-4: Fest- und Loslagerung des Reformers im Brenner-Gehäuse 12

Abbildung 4-5: Anströmeinheit des Brenners 13

Abbildung 4-6: Katalysator-Schüttung des Brenners 14

Abbildung 4-7: Reformer-Konstruktion 16

Abbildung 3-8: Fließbild sowie Sensoren und Aktoren des Prüfstandes 17

Abbildung 4-9: Brenner-Prüfstand 19

Abbildung 4-10: Hotbox (offen) mit integrierten Brenner und Vermiculite-Schüttung 20

Abbildung 4-11: verwendete Membranpumpe 21

Abbildung 4-12: 3D-CAD-Darstellung des Prüfstandswärmetauschers (rot: Abgasanschluss; blau: Brenngas-Anschluss; grau: Luftanschluss und Gehäuse) 21

Abbildung 4-13: elektrische Heizpatrone (nach Verwendung bei 700°C Austrittstemperatur) 22

Abbildung 4-14: Heizschlauch mit Regelelektronik der Firma Hillesheim GmbH 22

Abbildung 4-15: Druckfeder-element 23

Abbildung 4-16: Oberflächentemperaturmessung mit Federmechanismus 23

Abbildung 4-17: Brenner-Gehäuse mit projiziertem Raster der Oberflächentemperatur-Messstellen; zu beachten: Brenner-Eintritt ist hier rechts, abweichend zu nachfolgend dargestellten Simulationsergebnissen mit Anströmung links (180° um z-Achse gedrehte Ausrichtung) 24

Abbildung 4-1: Brenner mit ausgerichteter Katalysator-Packung vor der experimentellen Erprobung 25

Abbildung 4-2: geordnete katalytische Packung der oberen Brennerlage nach der Erprobung bei geringen Temperaturen (320°C bis 460°C) 26

Abbildung 4-3: geordnete katalytische Packung der unteren Brennerlage 26

Abbildung 4-4: für Propan-Betrieb optimierte fraktionierte katalytische Brenner-Schüttung für der experimentellen Erprobung 27

Abbildung 5-5: Brennstoff-Luft-Zufuhr des Brenners im instationären Aufheiz-Betrieb 28

Abbildung 5-6: Brenner-Oberflächentemperaturen im instationären Aufheiz-Betrieb 28

Abbildung 5-7: Abgas-Zusammensetzung und Brennstoff-Leistung währen des instationäre Aufheizbetriebs 29

Abbildung 5-8: fraktionierte Brenner-Schüttung nach der experimentellen Erprobung 29

Abbildung 4-9: Wärmeübertragungsleistung von Brenner auf Reformer für unterschiedliche Strömungsstiuationen 30

Abbildung 5-10: Wärmeübertragungsleistung in Abhängigkeit des Reformer-Volumenstroms 30

Abbildung 5-1: modelliertes differentielles Volumenelement 31

Abbildung 5-2: Modellgebiet mit Symmetriebetrachtung 33

Abbildung 5-3: versetztes Gitter 34

Abbildung 5-4: abgewandelter SIMPLER-Algorithmus 34

Abbildung 6-5: Programmablauf [5] 35

Abbildung 6-1: Vorgehensweise der Modellverifikation 36

Abbildung 7-2: experimentell ermitteltes Temperaturprofil der Brenner-Oberfläche einer Verlustmessung 37

Abbildung 6-3: Simuliertes Strömungsfeld des Brenners mit gering ausgeprägtem Anströmprofil 39

Abbildung 6-4: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse der Simulation bei gering ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners 39

Abbildung 6-5: simulierte Temperaturprofile bei gering ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners ($\sigma BLuft \approx 0{,}069$) mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen 40

Abbildung 6-6: Strömungsfeld des Brenners bei ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners 41

Abbildung 6-7: Temperaturfelder der Simulation bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners 42

Abbildung 6-8: simulierte Temperaturprofile bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenners mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen 43

Abbildung 6-9: Strömungsfeld des Brenners mit festgelegter Anströmsituation 44

Abbildung 6-10: Strömungsfelder für Reformer und Brenner bei ausgeprägter Anströmung des Reformers 45

Abbildung 6-11: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Reformer-Gas der Simulation bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers 46

Abbildung 6-12: flächenspezifischer Wärmestrom zwischen Reformer-Gas und Reformer-Gehäuse für ein stark ausgeprägtes Anströmprofil des Reformers 47

Abbildung 6-13: simulierte Temperaturprofile bei stark ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen 48

Abbildung 6-14: Strömungsfeld des Brenners und Reformers für eine gleichmäßige Anströmsituation des Reformers 50

Abbildung 6-15: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Reformer-Gas der Simulation bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers 51

Abbildung 6-16: flächenspezifischer Wärmestrom zwischen Reformer-Gas und Reformer-Gehäuse für ein wenig ausgeprägtes Anströmprofil des Reformers 52

Abbildung 6-17: simulierte Temperaturprofile bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Reformers mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen 52

Abbildung 6-18: Strömungsfeld des Reformers für eine angenommene und festgelegte Anströmsituation 54

Abbildung 6-19: Strömungsfeld des Brenners und Reformers für eine relativ gleichmäßige Anströmsituation des Brenners mit Brenngas 55

Abbildung 7-20: simulierte Stoffmengenanteile für Wasserstoff und Wasser mit dargestellter Gauß-Kurve als Anströmprofil für Brenngas und Luft des Brenners 56

Abbildung 6-21: Temperaturfelder von Brenner-Gas und Brenner-Gehäuse für eine relativ gleichmäßige Anströmsituation des Brenners mit Brenngas 57

Abbildung 6-22: simulierte Temperaturprofile bei schwach ausgeprägtem Anströmprofil des Brenner-Brenngases mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen 58

Abbildung 6-23: Zusammenhang zwischen Beschleunigungsfaktor und Hatta-Zahl [6] 59

Abbildung 6-24: Hatta-Zahl 60

Abbildung 7-25: Anströmprofil des Brenners mit Brenngas und Luft 60

Abbildung 6-26: simulierte Stoffmengenanteile für Wasserstoff und Wasser 61

Abbildung 6-27: Hatta-Zahl für 61

Abbildung 6-28: simulierte Temperaturprofile bei stärker ausgeprägtem Anströmprofil des Brenner-Brenngases mit experimentell erhobenen Oberflächentemperaturen.....62

Abbildung 6-29: Modellbereich des Brenner-Gehäuses (Deckel, orange markiert) nach ca. 5h Betrieb bei etwa 600°C anhand Wasserstoff-Propan-Luft-Gemisch sowie konvektive Flächenbelastung der numerischen Simulation durch Wasserstoff-Luft-Betrieb des Brenners bei ca. 560°C Eintrittstemperatur 63