

TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN

Institut für Wasserchemie und Chemische Balneologie
Lehrstuhl für Analytische Chemie

Untersuchungen zur Aerosolabscheidung in AGR-Wärmetauschern

Gabriele Theresia Maria Hörnig

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Chemie der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr.-Ing. Kai-Olaf Hinrichsen

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. rer. nat. habil. Reinhard Nießner
2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Georg Wachtmeister

Die Dissertation wurde am 31.01.2012 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Chemie am 17.04.2012 angenommen.

DANKSAGUNG

Die vorliegende Arbeit entstand in der Zeit von Oktober 2008 bis Januar 2012 am Lehrstuhl für Analytische Chemie der Technischen Universität München unter der Leitung von Herrn Univ.-Prof. Dr. Reinhard Nießner. Die Arbeit wurde finanziell von der Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen (Projekte Nr. 966 und Nr. 1048) gefördert.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Reinhard Nießner für die Möglichkeit, dieses äußerst interessante Thema an seinem sehr vielseitig und interdisziplinär orientierten Institut erfolgreich zu bearbeiten. Durch sein entgegengebrachtes Vertrauen gab er mir den Freiraum, selbstständig an der mir übertragenen Thematik zu arbeiten, wobei seine Tür jederzeit für Fragen offen stand.

Die Arbeit stellt das Ergebnis einer Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der Technischen Universität München dar. Darum gebührt meinem dortigen Kollegen Peter Völk ein großes Dankeschön für die viele Hilfe, die unzähligen Diskussionen und das Basteln während der gesamten Dauer meiner Promotion. Auch Herrn Prof. Dr.-Ing. Georg Wachtmeister möchte ich herzlich danken für die Nutzung der Infrastruktur seines Lehrstuhls, seine wertvollen Anregungen und seine Bereitschaft als Zweitprüfer der vorliegenden Arbeit aufzutreten.

Den Herren Dr. Frank Krämer und Ralf Thee sowie dem gesamten Arbeitskreis der FVV-Projekte danke ich für die Aufmerksamkeit und Anregungen während der Projektsitzungen und die Unterstützung in allen organisatorischen Fragen.

Bei Martin Mühlbauer und Burkhard Schillinger von der Forschungsneutronenquelle Heinz-Maier-Leibnitz (FRM II) bedanke ich mich für die Unterstützung bei der Durchführung und Auswertung der Experimente an der Einrichtung *ANTARES*.

Meinen KollegInnen aus der Aerosolgruppe Henrike Bladt, Dr. Markus Knauer, Dr. Matteo Carrara, Johannes Schmid, Jan-Christoph Wolf und Benedikt Grob möchte ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre, zahlreiche richtungsweisende Diskussionen und das Aushalten meiner Launen meinen Dank aussprechen.

Susanna Mahler danke ich dafür, dass sie alle meine Fragen immer gerne beantwortet und mich bei Laborarbeiten unterstützt hat. Frau Birgit Apel danke ich für die Durchführung der Sulfatbestimmungen. Ein weiteres großes Dankeschön gebührt Sebastian Wiesemann, Roland Hoppe sowie Julius El Masry für die hervorragenden Fertigungsarbeiten und jegliche Unterstützung den Prüfstand betreffend.

Allen anderen KollegInnen, u.a. Maria Knauer, Xaver Karsunke, Susanna Oswald, Kathrin Schwarzmeier, Susanne Huckele und Klaus Wutz, danke ich dafür, dass sie mehr sind, als nur Kollegen, neben denen nur so dahin gearbeitet wird. Allen nicht namentlich erwähnten Kollegen danke ich für die hervorragende Arbeitsatmosphäre am Institut und den Kaffee.

Den Studenten Heinrich Birndorfer, Bettina Kiwull, Gabriel Fischer, Timon Geppert, Sebastian Weiker, Sebastian Wohlfahrt, Claudia Hille, Patrick Köllner und Markus Hager, die erfolgreich eine Studienarbeit anfertigten oder ihr Praktikum unter meiner Anleitung absolvierten, danke ich für ihren Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit.

Last but not least gebührt meiner Familie mein herzlichster Dank dafür, dass ich mich immer auf ihre Förderung und Unterstützung verlassen konnte.

VERÖFFENTLICHUNGEN

Wesentliche Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht.

Hörnig, G., Völk, P., Wachtmeister, G. und Niessner, R.; Fouling of EGR Heat Exchangers – Investigation of Mechanisms Involved in Soot Particle Deposition, *Proceedings of the 9th Heat Exchanger Fouling and Cleaning Conference*, Crete Island, Greece; 7 Seiten, 2011

Wenn die Wissenschaft ihren Kreis durchlaufen hat, so gelangt sie natürlicher Weise zu dem Punkte eines bescheidenen Mißtrauens, und sagt, unwillig über sich selbst: Wie viele Dinge gibt es doch, die ich nicht einsehe.

Immanuel Kant

INHALTSVERZEICHNIS

Kurzfassung	VII
Summary	IX
1 Einleitung und Problemstellung	1
2 Theoretische Grundlagen	3
2.1 Diesellabgas	3
2.1.1 Entstehung	3
2.1.2 Europäische Abgasgesetzgebung	4
2.2 Abgaszusammensetzung	5
2.2.1 Rußpartikel	5
2.2.2 Unverbrannte Kohlenwasserstoffe	10
2.2.3 Schwefelsäure	11
2.2.4 Stickstoffoxide	11
2.2.5 Wasserdampf	12
2.2.6 Sonstige Bestandteile	12
2.3 Maßnahmen zur Schadstoffreduktion	13
2.3.1 Abgasrückführung	13
2.3.2 Weitere Verfahren	16
2.4 Fouling von AGR-Kühlern	17
2.4.1 Definition Fouling	17
2.4.2 Auswirkungen des Kühler-Foulings	17
2.5 Ablagerungsmechanismen	18
2.5.1 Diffusion	19
2.5.2 Sedimentation	20
2.5.3 Elektrostatische Abscheidung	20

2.5.4	Kondensation	21
2.5.5	Diffusiophorese	22
2.5.6	Thermophorese	24
2.5.7	Impaktion	25
2.5.8	Interzeption	26
2.5.9	Einfluss des Strömungszustandes	27
2.5.10	Anwendungen der Partikelabscheidung	28
2.6	Die Ablagerungsschicht	28
2.6.1	Reduktion des Schichtwachstums durch isolierenden Effekt	28
2.6.2	Wiederablösung der Ablagerungsschicht	29
2.6.3	Eigenschaften der Ablagerungsschicht	30
3	Experimenteller Teil	31
3.1	Modellgasprüfstand	31
3.1.1	Aufbau	31
3.1.2	Modellkühler	32
3.1.3	Rußzeugung	33
3.1.4	Aerosolcharakterisierung	35
3.1.5	Erzeugung unterschiedlich zusammengesetzter Aerosole	37
3.2	Chemische Charakterisierung verschiedener Rußproben	39
3.2.1	Probenahme	39
3.2.2	Coulometrische Kohlenstoffbestimmung	40
3.2.3	Charakterisierung der Kühlerablagerungen	44
3.2.4	Charakterisierung mittels Raman-Spektroskopie	44
3.2.5	Neutronenradiographie	46
3.3	Bestimmung Kondensatmassenstrom	50
3.4	Ablagerungsexperimente	51
3.5	Bestimmung der partikelgrößenabhängigen Abscheideeffizienz	52
3.5.1	Größenabhängige Abscheideeffizienz	52
3.5.2	Erzeugung monodisperser Aerosole	53
3.5.3	Versuchsbedingungen und Versuchsdurchführung	55
3.5.4	Ortsaufgelöste Bestimmung von Partikelkonzentration und Abscheideeffizienz	55

4	Berechnungen	57
4.1	Zielsetzung der Modellrechnung	57
4.2	Grundlagen der Modellrechnung	57
4.2.1	Beschreibung Abgas	58
4.2.2	Beschreibung Temperaturprofil	58
4.2.3	Beschreibung Strömungszustand	60
4.2.4	Weitere Annahmen	60
4.3	Thermophorese	61
4.3.1	Thermophorese in einem laminar durchströmten Rohr	62
4.3.2	Thermophorese im durchströmten rechteckförmigen Kanal	62
4.3.3	Thermophorese in einem turbulent durchströmten Rohr	63
4.3.4	Thermophoretische Geschwindigkeit	65
4.3.5	Isotherme Abscheideeffizienz	66
4.4	Diffusiophorese	66
4.4.1	Diffusionskoeffizient	66
4.4.2	Diffusiophoretische Geschwindigkeit	68
4.5	Diffusion	72
4.6	Charakteristische Zeiten	74
4.7	Parametervariation	75
5	Ergebnisse und Diskussion	76
5.1	Aerosolcharakterisierung	76
5.2	Coulometrische Kohlenstoffbestimmung	77
5.2.1	Filterproben	77
5.2.2	Ablagerungen	78
5.3	Calcium- und Sulfatbestimmung	80
5.4	Raman-Spektroskopie	81
5.5	Neutronenradiographie	82
5.6	Bestimmung Kondensatmassenstrom	84
5.7	Ablagerungsexperimente	85
5.7.1	Variation der Versuchslaufzeit	85
5.7.2	Trockener Ruß (Betriebspunkt A)	85
5.7.3	Zugabe von Wasserdampf (Betriebspunkte H und I)	86
5.7.4	Zugabe von HC (Betriebspunkte F und G)	86

5.7.5	Zugabe von HC und H ₂ O (Betriebspunkt J)	87
5.7.6	Zugabe von HC, H ₂ O und H ₂ SO ₄ (Betriebspunkte B, C, E, K)	88
5.7.7	Beschreibung der beobachteten Ablagerungen	89
5.8	Bestimmung der partikelgrößenabhängigen Abscheideeffizienz	89
5.8.1	Abhängigkeit von den Temperaturbedingungen	89
5.8.2	Abhängigkeit vom Strömungszustand	90
5.8.3	Ablagerung am Kühlereintritt	91
5.8.4	Ortsaufgelöste Bestimmung von Partikelkonzentration und Abscheideeffizienz	95
5.8.5	Zugabe von HC	98
5.8.6	Zugabe von Wasserdampf	102
5.9	Effekte der Kondensation	103
5.10	Berechnung Diffusion	105
5.11	Berechnung Thermophorese	107
5.11.1	Verhalten der thermophoretischen Geschwindigkeit bei Änderung der Temperaturbedingungen	107
5.11.2	Verhalten der thermophoretischen Geschwindigkeit bei Änderung des Strömungszustandes	108
5.11.3	Verhalten der thermophoretischen Abscheideeffizienz in Abhängigkeit zum Wandabstand	110
5.11.4	Vergleich der verschiedenen Berechnungsansätze	110
5.12	Berechnung Diffusiophorese	112
5.13	Berechnung mittels Kondensatmassenstrom	112
5.13.1	Berechnung mittels Dampfdruckgradient	115
5.13.2	Berechnung der Abscheidewahrscheinlichkeit in Anwesenheit von Schwefelsäure	117
6	Zusammenfassung und Ausblick	118
7	Anhang	122
7.1	Abkürzungen und Symbole	122
7.2	Geräteverzeichnis	127
7.3	Chemikalienverzeichnis	128
8	Abbildungsverzeichnis	130

9 Tabellenverzeichnis	133
10 Literaturverzeichnis	134

KURZFASSUNG

Eine wichtige innermotorische Maßnahme zur Reduktion der Stickoxid-Emissionen von Dieselmotoren stellt die Abgasrückführung (AGR) dar. Besonders effektiv ist dabei diejenige Variante, bei der die Temperatur des rückgeführten Abgases in einem Gas-Wasser-Kühler vor Wiedereintritt in den Motor gekühlt wird. Aufgrund des Temperaturgradienten zwischen Abgasströmung und Rohrwand kommt es jedoch zu Kondensation hochsiedender Komponenten wie Kohlenwasserstoffen und Säuren, die eine adhäsive Grundschicht auf der Kühlerwand bilden. Zudem werden Rußpartikel und Ascherückstände abgeschieden. Die so gebildeten Ablagerungen reduzieren die Kühlerleistung massiv im Laufe der Zeit und sollen vermieden werden.

Da die Wirkmechanismen, welche zum Aufbau einer isolierenden Schicht führen und deren Einflussparameter nicht im Detail verstanden sind, befasst sich die vorliegende Arbeit mit der Bestimmung der maßgeblichen Faktoren, die zur Verschmutzung der eingesetzten Kühler beitragen.

Es wurden umfangreiche Versuchsreihen auf einem Modellprüfstand durchgeführt. Dieser erlaubt die Nachbildung eines realen Dieselabgases unabhängig von einem Verbrennungsmotor. Dabei wurden verschiedene Einflussgrößen auf den Versottungsprozess variiert und bewertet.

Um weitere Informationen über die Schichtdicken der entstandenen Ablagerungen zu erhalten, wurden diese mit Hilfe von Neutronenradiographie orts aufgelöst ermittelt. Zusätzlich wurde der Kohlenstoff-, Calcium- sowie Sulfatgehalt der Ablagerungen bestimmt. Die Zusammensetzung der Ablagerungen zeigte einen dominierenden Einfluss der Kondensation auf den Schichtaufbau.

Zudem wurden für unterschiedlichste Bedingungen rechnerisch Diffusion, Thermophorese und Diffusiophorese für einen Modellkühler detailliert betrachtet. Daraus konnte eine Aussage über die Wirksamkeit der beteiligten Mechanismen getroffen werden, die durch experimentell gewonnene Daten validiert werden sollte.

Die experimentell und rechnerisch gewonnenen Erkenntnisse dienen als Grundlage für Empfehlungen für den Kühlerbetrieb mit minimierter Versottungsneigung.

SUMMARY

Future emission standards require an increased application of cooled exhaust gas recirculation (EGR) which is a very effective way to reduce nitrogen oxide emissions in diesel exhaust gases. An interconnected air-to-water cooler performs the task of reducing the gas temperature in this application. Due to the temperature difference between the exhaust gas and the cooler wall, condensation of unburnt hydrocarbons and acid takes place and leads to the formation of an adhesive layer on the cooler wall. Additionally soot and ash particles become deposited. Thus insulating deposits are formed which reduce heat transfer and thus the cooling efficiency of the device and should therefore be avoided.

The mechanisms that lead to the build-up of the insulating layer and all parameters influencing these mechanisms are not well understood. Therefore the work in hand deals with the determination of the most important parameters influencing EGR heat exchanger fouling.

Extensive experimental series were conducted. The effect of parameter variations on the deposit build-up was studied using a model test bench which allowed simulation of diesel engine exhaust gases independently from a combustion engine. Different parameters were regarded and assessed.

To gain further information about the thickness of the deposits the space-resolved layer thickness was determined using neutron radiography. Carbon, calcium and sulfate content of the deposits were additionally determined. The concentrations found proved a dominating influence of condensation on deposit build-up.

Diffusion, thermophoresis and diffusiophoresis were calculated for a model cooler. The results allowed drawing conclusions on the efficiency of these mechanisms which should be validated using the experimental data obtained during the course of the project.

The results of the experiments and calculations served as a base for recommendations for cooler operating conditions under which fouling is minimized.

1 EINLEITUNG UND PROBLEMSTELLUNG

Die moderne Gesellschaft strebt nach Flexibilität und Mobilität. Dies hat einen stetigen Anstieg des Verkehrsaufkommens zur Folge. Zu Beginn des Jahres 2011 lag der Kraftfahrzeugbestand in Deutschland bei 50,9 Millionen Einheiten [1]. Bei den Neuzulassungen ist in den letzten 15 Jahren der Anteil an Personenkraftwagen (Pkw) mit Dieselmotor kontinuierlich angestiegen und liegt derzeit bei 47,1 % [2, 3]. Dieser Trend lässt sich für ganz Westeuropa beobachten und liegt begründet in steuerlichen Vorteilen sowie dem niedrigeren Verbrauch im Vergleich zum Ottomotor. Für schwere Nutzfahrzeuge wie Lastkraftwagen liegt der Anteil des Dieselmotors europaweit sogar bei 100 % [4].

Allerdings sind in den letzten Jahren die gesetzlichen Vorgaben zur Reduktion der Schadstoffemissionen, gerade im Bereich der Nutzfahrzeuge, immer mehr verschärft worden. Bereits mit Einführung der Euro 4-Gesetzgebung im Jahr 2005 reichten die bis dahin etablierten Strategien ohne Abgasnachbehandlung (z.B. optimierte Brennräume, verbesserte Einspritzung und Aufladung mit gekühlter Ladeluft) nicht mehr aus, um die vorgegebenen Grenzwerte einzuhalten. Deshalb wird inzwischen neben anderen inner- und außermotorischen Maßnahmen die sogenannte Abgasrückführung zur Schadstoffreduktion eingesetzt [5].

In Dieselmotoren findet keine vollständige Verbrennung statt. Abhängig von den Bedingungen bleiben teilweise oder komplett unverbrannte Kohlenwasserstoffe und Rußpartikel im Abgas zurück. Diese können bei gekühlter Abgasrückführung zu Ablagerungen in den verwendeten Wärmetauschern führen. Durch das Anhaften der Abgasbestandteile an der gasseitigen Kühlerwand kommt es zum Aufbau einer Isolationsschicht, die mit erheblichen Kühlleistungseinbußen verbunden ist.

Die Mechanismen, die zum Fouling in AGR-Kühlern beitragen, sind derzeit noch nicht vollständig geklärt. Meist werden sie nur experimentell und für einen speziellen Anwendungsfall (definierter Kühler und Motor) untersucht. Ziel dieser Dissertation war es, ein besseres Verständnis für die grundsätzlich in jedem Kühler auftretenden Ablagerungsmechanismen zu schaffen.

Dazu sollte zunächst Dieselaabgas möglichst realitätsnah nachgebildet werden, um unabhängig vom Verbrennungsmotor verschiedene Parametervariationen betrachten zu können. Möglich war dies mit einem Modellgasprüfstand, der im Rahmen einer vorausgegangenen Diplomarbeit aufgebaut wurde [6]. An diesem Prüfstand sollten zahlreiche Versuche durchgeführt und die verschiedenen Einflüsse der Ruß- und Abgaszusammensetzung sowie der Temperaturen und Massenströme der beteiligten Medien ermittelt werden. Weitere Informationen über die Dicke der entstandenen Ablagerungsschicht sollten mit Hilfe von Neutronenradiographie ermittelt werden. Zusätzlich sollte die Zusammensetzung der Ablagerungen auf ihren Kohlenstoff-, Calcium- sowie Sulfatgehalt hin analysiert werden.

Die experimentell gewonnenen Erkenntnisse sollten anschließend in die Erstellung eines Berechnungsmodells eingebracht werden. Dieses sollte die wichtigsten bereits bekannten und bei der Ablagerungsbildung dominierend wirkenden Mechanismen berücksichtigen. Basis dieses Modell waren zunächst die aus der Theorie bekannten Formeln und Zusammenhänge.

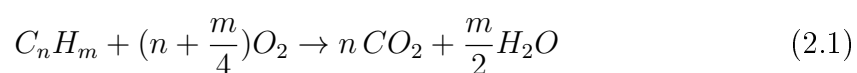
Die gewonnenen Erkenntnisse über die Wirkmechanismen sollten dann als Grundlage für die Erarbeitung von Maßnahmen zur Verhinderung von Ablagerungen bzw. von Möglichkeiten zur Ablösung einer bereits vorhandenen Schmutzschicht dienen.

2 THEORETISCHE GRUNDLAGEN

2.1 Diesellabgas

2.1.1 Entstehung

Bei der dieselmotorischen Verbrennung wird Kraftstoff gegen Ende der Verdichtung direkt unter hohem Druck in die verdichtete, heiße Luft des Brennraums eingespritzt. Die Reaktionspartner mischen sich erst während der Reaktion im Zylinder durch Diffusion. Es liegt ein heterogenes Luft–Kraftstoff–Gemisch vor, welches von selbst zündet [7, 8]. In der Regel werden für den Betrieb von Dieselmotoren Kraftstoffe eingesetzt, die aus langkettigen Kohlenwasserstoffverbindungen (C_nH_m , $n > 10$) bestehen und leicht zerfallen [9]. Bei einer idealen, vollständigen Verbrennung mit reinem Sauerstoff findet eine Reaktion nach folgender Gleichung statt:



Als Reaktionsprodukte befinden sich nach dieser Gleichung demnach im Abgas nur Wasser und Kohlendioxid. Bei der realen motorischen Verbrennung liefert jedoch die im Überschuss vorliegende Umgebungsluft den nötigen Sauerstoff. Diese setzt sich aus etwa 21% O_2 und 78% N_2 sowie unreaktiven Komponenten wie Argon zusammen [10]. Damit kommt Stickstoff als zusätzlicher Reaktionspartner hinzu.

Der größte Anteil des Kraftstoffs verbrennt in einer Diffusionsflamme. Der Kraftstoff wird bei hohem Druck mit großer Geschwindigkeit flüssig in den Brennraum eingespritzt. Dadurch wird er in feine Tröpfchen mit Durchmessern von wenigen μm

zerstäubt und bildet mit der Luft ein heterogenes Gemisch. Die kleinen Kraftstofftröpfchen beginnen in der heißen Luft zu verdampfen und zu verbrennen.

Verdampfung und Verbrennung setzen an der Oberfläche ein, wohin Sauerstoff und Wärme zuerst gelangen und setzen sich dann in Richtung des Tröpfchenkerns fort. Während der gesamten Verbrennung gibt es im Inneren der Tröpfchen stets eine fette Gemischzone mit Sauerstoffmangel, obwohl insgesamt im Brennraum Sauerstoffüberschuss vorliegt. Mit der Verbrennung steigt die Temperatur im Innern der Tröpfchen an, dies begünstigt zusammen mit dem hohen Druck die Spaltung der Kohlenwasserstoffe. Die so entstehenden Molekülbruchstücke verzögern die Brenngeschwindigkeit, dadurch verbrennt der Kraftstoff nicht mehr vollständig und Schadstoffe können entstehen [9, 11].

2.1.2 Europäische Abgasgesetzgebung

Die Europäische Union sieht laut ihrer Verordnung EG Nr. 715/2007 Grenzwerte für verschiedene Schadstoffe zum Schutze der Umwelt vor. Die Fahrzeughersteller sind per Gesetz dazu verpflichtet, diese Richtlinien bei der Entwicklung neuer Motoren umzusetzen [12, 13]. Tabelle 2.1 fasst die aktuellen Grenzwerte für dieselbetriebene Personenkraftwagen (Pkw) und Nutzfahrzeuge (Nfz) zusammen. Der Schwefelgehalt der Kraftstoffe für Pkw und leichte Nfz wurde im Jahr 2005 auf maximal 50 ppm (DIN EN 590) begrenzt. Seit 2009 ist schwefelfreier Kraftstoff mit weniger als 10 ppm Schwefel vorgeschrieben [14, 15]. Für schwere Nutzfahrzeuge lag dieser Grenzwert noch bis 2011 bei 1000 ppm [16].

Tabelle 2.1 Emissionsgrenzwerte für Dieselfahrzeuge [12].

	Euro V (derzeit gültig)			Euro VI (ab 09/2014)		
	CO (mg/km)	NO _x (mg/km)	PM (mg/km)	CO (mg/km)	NO _x (mg/km)	PM (mg/km)
Pkw	500	180	5	500	80	5
Nfz	500 - 740	180 - 280	5	500 - 740	80 - 125	5

2.2 Abgaszusammensetzung

Das Abgas eines Motors setzt sich aufgrund der gegebenen Bedingungen in der Regel aus Stickstoff (N_2), Sauerstoff (O_2), Kohlenstoffdioxid (CO_2), Wasserdampf (H_2O), Edelgasen, unverbrannten Kohlenwasserstoffen (HC), Kohlenstoffmonoxid (CO), Stickstoffoxiden (NO_x), Schwefeloxiden (SO_x) sowie Feststoffen (Rußpartikel, PM) zusammen [17, 11]. Die Konzentration der einzelnen Bestandteile ist dabei abhängig vom Lastpunkt des Motors (vgl. Tabelle 2.2). Die für diese Arbeit relevanten Schadstoffkomponenten werden im Folgenden kurz vorgestellt.

Tabelle 2.2 Zusammensetzung von Diesellabgas [11]

Abgasbestandteil	im Leerlauf	bei höchster Leistung
Stickoxide (NO_x)	50 - 100 ppm	600 - 2000 ppm
Kohlenwasserstoffe (HC)	50 - 500 ppm	< 50 ppm
Kohlenmonoxid (CO)	100 - 450 ppm	< 300 ppm
Kohlendioxid (CO_2)	bis 3,5 Vol.-%	ca. 12 Vol.-%
Wasserdampf (H_2O)	2 - 4 Vol.-%	bis 8 Vol.-%
Sauerstoff (O_2)	18 Vol.-%	4 - 8 Vol.-%
Stickstoff (N_2) u.a.	Rest	Rest
Rußgehalt Pkw	< 50 $mg\ m^{-3}$	50 - 120 $mg\ m^{-3}$

2.2.1 Rußpartikel

Entstehung

Ruß und andere anthropogen erzeugte Nanopartikel–Aerosole werden durch eine Reihe chemischer und physikalischer Wachstumsprozesse gebildet [18, 19, 20]. Die inhomogene Mischung von Kraftstoff und Luft im Brennraum führt zu unvollständiger Verbrennung und schließlich zur Entstehung von Rußpartikeln. Für die Ruß- bzw. Partikelbildung gibt es verschiedene Theorien.

Die Acetylen–Theorie wird als die wahrscheinlichste Hypothese bei der Rußbildung angesehen [21]. Demnach führen Spaltungs- und Dehydrierungsreaktionen zu einer

Eine dritte Theorie stellt die Elementarkohlenstoffhypothese dar. Diese basiert auf diffusionskontrollierter Rußbildung und berücksichtigt deren zeitlichen Verlauf. Die entsprechenden Vorgänge zu Rußbildung, Koagulation der Primärpartikel sowie zur Nachoxidation des Rußes zeigt Abbildung 2.2. Der starke Konzentrationsunterschied bei der Verbrennung und die Diffusionsvorgänge der einzelnen Komponenten des Gemisches resultieren in einer zeitlich und räumlich variablen Zusammensetzung. Aufgrund ihrer geringen Masse und ihres kleinen Durchmessers weisen Wasserstoffradikale und -moleküle deutlich höhere Diffusionskoeffizienten auf als beispielsweise Kohlenwasserstoffradikale oder Rußteilchen. Wasserstoff kann daher in der gleichen Zeit größere Distanzen zurücklegen als die für die Rußbildung relevanten Spezies wie Acetylen. Der vorhandene Sauerstoff wird daher vor allem für die Oxidation des Wasserstoffs beansprucht. Die dabei freigesetzte Energie erwärmt das Brennstoffgemisch und beschleunigt die Pyrolyse der Kohlenwasserstoffspezies. Der Wasserstoff bewirkt somit, dass die Sauerstoffkonzentration an der Flammenfront gegen Null geht. Folglich finden vor allem Reaktionen der Kohlenwasserstoffverbindungen untereinander statt, wobei ungesättigte Spezies entstehen, welche zu PAK weiter reagieren. Diese können wegen zunehmender Masse nur noch langsam diffundieren und wachsen durch häufige Zusammenstöße rasch zu Rußteilchen an [29, 30, 31, 24].

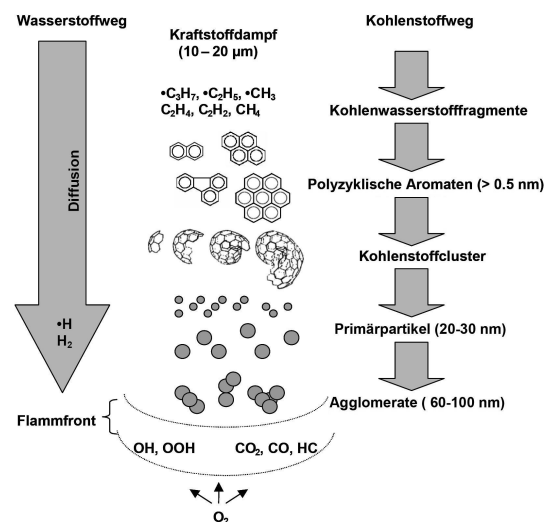


Abbildung 2.2 Rußbildung nach der Elementarkohlenstoffhypothese [29]

Zusammensetzung

Die entstehenden sphärischen Primärpartikel mit Durchmessern zwischen 10 nm und 40 nm neigen dazu, mit weiteren Partikeln kettenförmige, fraktalähnliche Agglomerate zu bilden [32, 33, 34]. Diese Agglomerate können aus mehreren Tausend Primärpartikeln bestehen und auf eine Größe von bis zu 1000 nm anwachsen, die meisten haben jedoch einen Durchmesser zwischen 20 nm und 500 nm [35, 36, 37]. Die Morphologie der Partikelagglomerate kann im Gegensatz zur Primärpartikelmorphologie je nach Entstehungsprozess und Zusammensetzung stark variieren [24].

Die Rußpartikel bestehen hauptsächlich aus festen Verbrennungsrückständen, dazu gehören vor allem reiner Kohlenstoff, aber auch die Asche von Kraftstoffadditiven oder Schmierstoffen. Auf der Oberfläche der Rußagglomerate finden sich einerseits Kohlenwasserstoffe (HC), auch SOF (soluble organic fraction) genannt. Andererseits finden sich anorganische Bestandteile, die sich aus Sulfaten von Kraftstoffschwefel sowie Additiv- und Motorölascherückständen, z.B. Calcium, zusammensetzen.

Die HC-Fraktion besteht aus Motorölbestandteilen sowie unverbranntem Kraftstoff, der prozentuale Anteil an den Partikeln ist von der Gastemperatur abhängig. Der Sulfatanteil hängt vom Schwefelanteil des Kraftstoffes ab [38, 39, 34, 40, 41].

Die Zusammensetzung der Rußpartikel variiert stark in Abhängigkeit des Luft-Kraftstoff-Verhältnisses, des Sauerstoffgehalts der Ladeluft sowie der Vermischung von Luft und Kraftstoff. Motorparameter wie Last, Einspritzdruck, AGR-Rate und Zylindertemperatur beeinflussen die Partikelbildung zusätzlich [40].

Alle so zusammengesetzten Feststoffemissionen des Motors werden auch unter dem Begriff Particulate Matter (PM) zusammengefasst [33]. Aufgrund seiner Bestandteile ist Dieseluß von Natur aus etwas klebrig [42].

Größenverteilung

Die nach dem oben beschriebenen Prozess entstehenden Rußpartikelagglomerate weisen eine charakteristische Größenverteilung auf. Diese wird am besten durch eine logarithmische Normalverteilung beschrieben, da Koagulation und Fragmentierung der Partikel auftreten. Koagulation, z.B. in den Rohrleitungen, führt zur Reduktion der Anzahlkonzentration und einer Zunahme der Partikelgrößen, Fragmentierung wirkt diesem Prozess entgegen [35, 33, 43, 37].

Die lognormale Häufigkeitsfunktion gibt den Anteil an Partikeln an, deren Logarithmus des Durchmessers zwischen $\log d_p$ und $\log d_p + d \log d_p$ liegt [35]:

$$df = \frac{1}{\log \sigma_g \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{(\log d_p - \log d_{median})^2}{2(\log \sigma_g)^2}\right) d \log d_p \quad (2.2)$$

Hierbei ist d_p der Partikeldurchmesser (Einheit nm) und d_{median} der Median der Verteilung. Die geometrische Standardabweichung σ_g ist eine dimensionslose Größe mit einem Wert ≥ 1 . Diese ist definiert als

$$\log \sigma_g = \left(\frac{\sum n_p (\log d_p - \log d_{median})^2}{\sum n_p - 1}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.3)$$

mit dem mittleren Partikeldurchmesser d_p und der Partikelanzahl n_p pro Volumenelement.

Die Größenverteilungen von Rußpartikeln aus realem Dieselabgas weisen mittlere Durchmesser zwischen 60 nm und 120 nm auf, der tatsächliche Wert ist abhängig vom verwendeten Kraftstoff sowie dem Einspritzverfahren [43]. Der überwiegende Anteil der im Abgas enthaltenen Partikel hat dabei einen Durchmesser zwischen 10 nm und 300 nm [44]. Die Standardabweichung liegt dabei in der Regel bei $\sigma_g \approx 1,7$ [43, 37].

Die Gesamtanzahlkonzentrationen der Rußpartikel in unbehandeltem Abgas liegen nach Shi et al. [45] sowie Kaiser und Konieczny [46] je nach Motordrehzahl und Lastpunkt zwischen 10^7 und 10^9 Partikeln pro cm^3 . Maricq et al. [44, 47] konnten sogar über 10^{12} Partikel pro cm^3 nachweisen. Die Dichte von Rußpartikeln liegt bei etwa 2000 kg m^{-3} [48, 49].

Gefährdungspotential

Die derzeit zur Schadstoffreduktion eingesetzten Maßnahmen führen zur Emission von immer kleiner werdenden Partikeln [50]. Gerade die kleinsten Partikel mit einer Größe von wenigen nm können tief in die Lunge eindringen, werden aber meist nicht wieder ausgeschieden [51].

Den auf der Partikeloberfläche adsorbierten Kohlenwasserstoffen, darunter in erster Linie den polyzyklischen Kohlenwasserstoffen (PAK), wird ein hohes kanzerogenes Wirkungspotential zugeschrieben [9, 52, 27, 53]. Es wurde zudem bereits gezeigt, dass Aerosolpartikel die Atemwege reizen und zu chronischen Atemwegserkrankungen führen können [54, 55, 56, 57]. Zudem können Nanopartikel den Herzschlag beeinflussen und daher Herz-Kreislauf-Erkrankungen auslösen [58].

2.2.2 Unverbrannte Kohlenwasserstoffe

Ausgangspunkt für die Entstehung der unverbrannten Kohlenwasserstoffe (HC) ist, wie auch bei der Bildung der Rußpartikel, die Diffusionsflamme. Durch Löschen der Flamme, das sogenannte Quenchen, können Fragmente der langkettigen Kraftstoffkomponenten im Abgas zurückbleiben. Löst sich der im Kolben vorhandene Wandfilm, so können auch Anteile des Schmieröls zur Entstehung der HC-Emissionen beitragen [27].

2.2.3 Schwefelsäure

Der Großteil des im Kraftstoff enthaltenen Schwefels wird durch die Verbrennung zu Schwefeldioxid (SO_2) oxidiert, ein kleiner Teil wird jedoch noch weiter zum Schwefeltrioxid (SO_3) oxidiert. In Anwesenheit des bei der Verbrennung entstehenden Wasserdampfes kann so ein nicht unerheblicher Anteil an Schwefelsäure entstehen [59, 60, 61]. Eine Verringerung des Schwefelanteils im Kraftstoff beeinflusst demnach direkt den Anteil an Schwefeloxiden im Abgas [39].

Schwefelverbindungen können die Wirkung von Oxidationskatalysatoren deutlich reduzieren, da sie deren Oberfläche vergiften [62]. Schwefelsäure kann die Atemwege angreifen. Zudem ist sie im Regenwasser löslich, der entstehende saure Regen kann Gebäude beschädigen, das Grundwasser kontaminieren und Waldsterben verursachen [10]. Durch die starke Reduktion des Schwefelgehaltes im Kraftstoff sowie effiziente Rauchgasreinigungsverfahren konnten diese Belastungen in der jüngeren Vergangenheit aber deutlich reduziert werden.

Im Falle von Pkw und leichten Nfz, die dem europäischen Standard entsprechen, spielt Schwefelsäure im Abgas heutzutage kaum mehr eine Rolle. Bei Großmotoren, die derzeit noch mit stark schwefelhaltigem Kraftstoff (mehr als 1000 ppm) betrieben werden dürfen, kann jedoch der Schwefel nach wie vor zu SO_2 sowie SO_3 umgesetzt werden.

2.2.4 Stickstoffoxide

Aufgrund der hohen Reaktionstemperaturen entstehen im Dieselmotor aus dem in der Verbrennungsluft enthaltenen Sauerstoff und Stickstoff die sogenannten Stickoxide (NO_x). Dazu gehören hauptsächlich Stickstoffmonoxid (NO), Stickstoffdioxid (NO_2) sowie geringe Mengen an Distickstoffmonoxid (N_2O) [63, 64]. Die Bildung der NO_x hängt einerseits von der Höhe der Reaktionstemperatur und andererseits von der Sauerstoffkonzentration ab.

NO_2 wirkt sich vor allem auf die Atemwege aus und kann zu einer Vielzahl von Lungenerkrankungen führen. Zudem besitzt es eine toxische Wirkung [65]. In der Atmosphäre bilden sich salpetrige Säure oder Salpetersäure und verursachen sauren Regen [10].

2.2.5 Wasserdampf

Der im Abgas enthaltene Wasserdampf stellt per se keinen Schadstoff dar. Jedoch kann sich die Emission von Wasserdampf auf das Klima auswirken, da der Dampf das stärkste natürliche Treibhausgas darstellt [66]. Zusammen mit NO_x und SO_x können zudem Säuren gebildet werden, die sowohl für die Abgasnachbehandlung als auch für die Umwelt problematisch sind.

2.2.6 Sonstige Bestandteile

Auch Kohlenmonoxid (CO) im Abgas ist eine Folge der unvollständigen Verbrennung. CO wird in der Atmosphäre ständig zu CO_2 oxidiert. Kohlenmonoxid ist ein farb- und geruchloses Gas. Da es im Blut mit dem Eisen des Hämoglobins Carbonylkomplexe bildet und so den Sauerstofftransport blockiert, zeigt es eine sehr toxische Wirkung [10, 27].

Kohlenstoffdioxid (CO_2) zählt zu den wichtigsten klimaschädlichen Gasen [66]. Da bei der Verbrennung der aus Kohlenwasserstoffen bestehenden Kraftstoffe immer CO_2 entsteht, kann eine Reduktion der CO_2 -Emissionen nur durch eine Reduktion des Kraftstoffverbrauchs herbeigeführt werden.

Alle weiteren gasförmigen Bestandteile des Abgases, dazu gehören N_2 , O_2 sowie die Edelgase, sind bereits in der Luft enthalten und sind daher nicht relevant für die weitere Betrachtung.

2.3 Maßnahmen zur Schadstoffreduktion

Zur Emissionsminderung werden in modernen Fahrzeugen sowohl innermotorische Maßnahmen als auch Abgasnachbehandlungssysteme eingesetzt [13]. Optimierung des Verbrennungsvorgangs mittels komplexer Motorsteuerung und Verwendung von Oxidationskatalysatoren führt innermotorisch zu einer kontinuierlichen Verringerung der CO- und HC-Emissionen [67]. Nachfolgend werden die wichtigsten Maßnahmen zur Schadstoffreduktion kurz vorgestellt.

2.3.1 Abgasrückführung

Prinzip

Die Abgasrückführung (AGR) ist eine hochwirksame innermotorische Maßnahme zur Reduktion der NO_x -Emissionen moderner Verbrennungskraftmaschinen [68]. Ein Teil des entstehenden Abgases wird dabei der angesaugten Luft beigemischt. Das Prinzip der sogenannten Hochdruck-AGR wird in Abbildung 2.3 schematisch verdeutlicht:

Das zurückzuführende Abgas wird vor dem Turbolader entnommen, im Abgaskühler gekühlt und nach dem Ladeluftkühler der verdichteten Ladeluft gleichmäßig wieder zugemischt. Die Menge des zurückzuführenden Abgases wird über ein AGR-Ventil geregelt. Ein großer Vorteil dieser Methode ist, dass sie ohne zusätzliche Betriebsstoffe eingesetzt werden kann [69, 5].

Durch AGR wird die Sauerstoffkonzentration im Zylinder verringert. Dies führt zur Erhöhung der spezifischen Wärmekapazität der Verbrennungsluft. Die Folge sind eine reduzierte Verbrennungsgeschwindigkeit und -temperatur [70, 71, 72]. Da die NO_x -Bildungsrate exponentiell von der Verbrennungstemperatur abhängig ist, besitzt die AGR ein hohes Potenzial NO_x -Emissionen zu senken [10, 73, 68]. Gleichzeitig werden aber der Partikelaustritt und die CO_2 -Emissionen, bedingt durch einen höheren Kraftstoffverbrauch, erhöht [74, 75, 76].

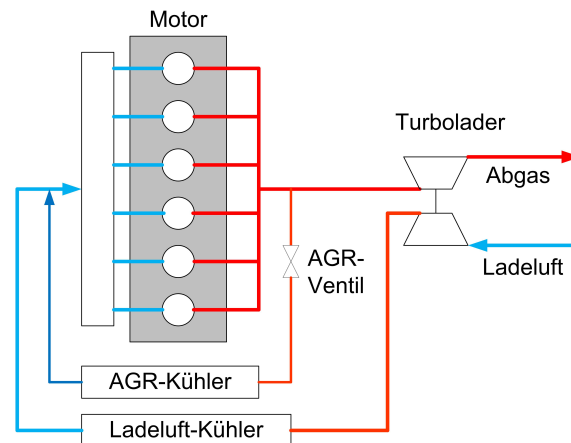


Abbildung 2.3 Prinzip der Abgasrückführung (Hochdruck-AGR)

Varianten der Abgasrückführung

Neben der Hochdruck-AGR kann die Abgasrückführung auch als Niederdruck-AGR ausgeführt werden. Zudem wird unterschieden zwischen gekühlter und ungekühlter AGR.

Bei der Niederdruck-AGR wird das Abgas erst nach dem Turbolader entnommen und mit der Ladeluft zwischen Luftfilter und Turbolader-Einlass vermischt [69] und somit bei Umgebungsdruck betrieben. Ihr Vorteil ist, dass die Entnahme nach der Abgasnachbehandlung (z.B. nach einem Partikelfilter) erfolgen kann. Dadurch sind im Abgas keine oder zumindest deutlich weniger HC-Komponenten und Rußpartikel enthalten. Dennoch wird die Hochdruck-AGR bevorzugt eingesetzt, da höhere AGR-Raten realisierbar sind.

Bei der gekühlten Variante wird das vom Motor kommende Abgas in einem AGR-Kühler gekühlt. Dazu wird meist das Motorkühlmittel verwendet. Es gibt jedoch auch den Ansatz, die AGR mit einem eigenen Kühlkreislauf zu betreiben, um die Temperatur des Abgases weiter abzusenken. Gekühlte AGR ist deutlich effizienter als ungekühlte. Dabei muss sich der verwendete AGR-Kühler durch eine kompakte Bauweise und eine hohe Kühlleistung auszeichnen.

AGR-Kühler

Die AGR-Kühler müssen im Betrieb enormen Beanspruchungen wie thermischen Belastungen und Druckpulsationen standhalten und demnach ausreichende Festigkeiten aufweisen [77]. Für die AGR werden häufig Wärmetauscher in Rohrbündel-Bauweise verwendet. Dabei werden die Rohre innen vom heißen Abgas durchströmt und von außen mit Kühlmittel gekühlt. Vereinzelt kommen auch Plattenkühler zum Einsatz. Bevorzugtes Material ist dabei Edelstahl [78, 70].

Die verwendeten Rohre weisen dabei, abhängig vom Hersteller, unterschiedlichste Geometrien auf. So gibt es Rohre mit runden oder eckigen Querschnitten, Rohre mit glatten Wänden, gedrillte Rohre und Ausführungen mit Kerben, Finnen oder verschiedensten Einsätzen, wie den sogenannten Winglets [5, 79, 80, 81, 70].

Die verschiedenen Ausführungen werden eingesetzt, um vor allem den gaseitigen Wärmetransportkoeffizient zu vergrößern. Damit soll die Kühlleistung erhöht werden. Allerdings können diese Maßnahmen auch zu einer höheren Verschmutzungsneigung des Kühlers führen [79].

Einfluss der AGR auf die Rußbildung

Untersuchungen an modernen Motoren deuten darauf hin, dass sich bei Verwendung von Abgasrückführung die Rußmorphologie durch die Variation der Verbrennungsbedingungen verändert [82, 50]. Nach Weber et al. [83] führt eine Verringerung der Abgastemperatur zu einer vermehrten Koagulationsneigung der Rußpartikel und somit zu einer Erhöhung der mittleren Partikelgröße. Es verschiebt sich also durch AGR die Partikelgrößenverteilung ein wenig in Richtung größerer Partikel, zudem nimmt die Partikelanzahlkonzentration zu [84, 43]. Dieser Effekt tritt auch durch Zumischung von Kohlenwasserstoffen in Dieselabgas auf [85]. Zudem erhöht AGR die Reaktivität der elementaren Rußpartikel [86].

2.3.2 Weitere Verfahren

Selektive katalytische Reduktion

Um die NO_x -Emissionen zu reduzieren, wird üblicherweise die selektive katalytische Reduktion (selective catalytic reduction, SCR) verwendet. Dabei werden die gebildeten Stickoxide mit Hilfe von Ammoniak, welcher aus einer mitgeführten Harnstofflösung generiert wird, zu N_2 und H_2O reduziert. Nachteilig bei diesem aufwändigen Katalysatorsystem sind die komplexe Steuerungstechnologie, das zusätzlich benötigte Bauvolumen und die damit verbundenen höheren Investitionskosten sowie die Notwendigkeit, ein zusätzliches Betriebsmittel mitzuführen [5, 87, 88].

Partikelfilter

Eine wirkungsvolle Maßnahme zur Reduktion der Partikelemissionen ist der Einsatz von Dieselpartikelfiltern (DPF). Ein DPF basiert auf einem keramischen Filter mit wechselseitig verschlossenen Kanälen, welche die im Abgas suspendierten Partikel beim Durchströmen der porösen Keramiksicht zurückhalten.

DPF weisen hohe Filtrationseffizienzen auf. Sie können bis zu 99 % der emittierten Partikelmasse zurückhalten, jedoch müssen die Filter in regelmäßigen Intervallen regeneriert werden, um ein Zusetzen zu vermeiden [89, 90, 91, 92]. Dabei wird unterschieden zwischen periodisch und kontinuierlich regenerierenden Partikelfiltern.

Beim Einsatz der periodisch regenerierenden Partikelfilter ist für die Verbrennung des eingelagerten Rußes ein Kraftstoff-Additiv oder eine späte Nacheinspritzung erforderlich [5].

Zum Betrieb der kontinuierlich regenerierenden Partikelfilter (CRT, continuously regenerating trap) wird schwefelarmer Kraftstoff benötigt [5, 93, 94]. Dem DPF ist ein Oxidationskatalysator vorgeschaltet, der NO_2 erzeugt, mit dem die Rußpartikel auf dem Filter oxidiert werden [25, 95]. Daher wird hier zusätzlich SCR benötigt, um überschüssiges NO_2 wieder zu vernichten.

Oxidationskatalysator

Oxidationskatalysatoren (DOC) können die vom Motor emittierte Partikelanzahl senken. Da zukünftig der Partikelaustritt nicht mehr masse-, sondern anzahllimitiert sein wird, gewinnen sie immer mehr an Bedeutung [96]. Auch der Anteil der HC-Emissionen wird durch den DOC reduziert [88].

2.4 Fouling von AGR-Kühlern

2.4.1 Definition Fouling

Verschiedene Mechanismen führen zu einem Transport der im Abgas enthaltenen Rußpartikel zur Kühlerwand, wo sich diese anlagern und eine isolierende Schicht bilden können. Dieser Prozess der Akkumulation von Ablagerungen auf den Oberflächen industrieller Apparaturen wird allgemein als Fouling bezeichnet [97]. Durch dieses komplizierte Phänomen verschlechtert sich der Wärmetransport und somit die Kühlereffizienz [98]. Fouling wird unabhängig von der Art der verwendeten Medien und Betriebsbedingungen in allen Arten von Wärmeaustauschern beobachtet [99].

Vor allem Hochdruck-AGR-Systeme sind hiervon betroffen, da die Entnahme des Abgases vor dem Abgasturbolader erfolgt und der Abgaskühler ohne vorgeschaltete Abgasnachbehandlungssysteme wie z.B. einen Oxidationskatalysator direkt mit den Rohemissionen beaufschlagt wird.

2.4.2 Auswirkungen des Kühler-Foulings

Durch den Aufbau einer Verschmutzungsschicht ändern sich in Abhängigkeit der Abgaszusammensetzung und der Kondensationsrate die Oberflächenbeschaffenheit der Kühlerwand und somit auch der Wärmeübergangskoeffizient [98]. Die Ablagerungen stellen einen zusätzlichen thermischen Widerstand zwischen dem Kühlmittel

und dem heißen Abgas dar. Dies entspricht einer reduzierten thermischen Leitfähigkeit der Wand [69].

Des Weiteren erfolgt eine Querschnittsverengung durch das Schichtwachstum, die zu einem Anstieg der Druckverluste über der Kühlerlänge führt. Dadurch kann die Motorleistung sinken [69].

Fouling führt in AGR-Kühlern häufig zu Kühlleistungseinbußen im Bereich von 20 % bis 30 % [100]. Dadurch steigen neben den Temperaturen am Kühleraustritt auch die Emissionen des Motors unerwünschterweise an. Die Leistungsverluste werden bei der Auslegung der Kühler üblicherweise durch Überdimensionierung von bis zu 30 % kompensiert, um die gesetzlichen Vorgaben einhalten zu können [69]. Es muss gewährleistet sein, dass das Abgas auch mit einem versotteten Kühler noch ausreichend gekühlt wird und die Grenzwerte für die NO_x -Emissionen eingehalten werden. Sie führt jedoch auch zu beträchtlichen zusätzlichen Kosten [99].

2.5 Ablagerungsmechanismen

Das Kühlerfouling resultiert aus dem Zusammenwirken verschiedener Mechanismen. Dazu zählen unter anderem Thermophorese, Kondensation und Diffusion. Zu den wichtige Einflussgrößen für die Verschmutzung gehören neben den Abgas- und Kühlwassertemperaturen auch die Massenströme sowie die Konzentrationen von Partikeln und kondensierbaren Komponenten im Abgas. Für vermehrte Adhäsionsneigung von Partikeln an der Wärmetauscherwand sind flüchtige Komponenten verantwortlich, die aufgrund der Unterschreitung ihrer Taupunkttemperatur einen Wechsel von der Gas- zur Flüssigkeitsphase durchlaufen, an der Wand auskondensieren und eine klebrige Grundschicht erzeugen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden nur die im wassergekühlten AGR-Kühler zu Fouling führenden Mechanismen betrachtet. Die wichtigsten Grundlagen werden im Folgenden kurz dargestellt.

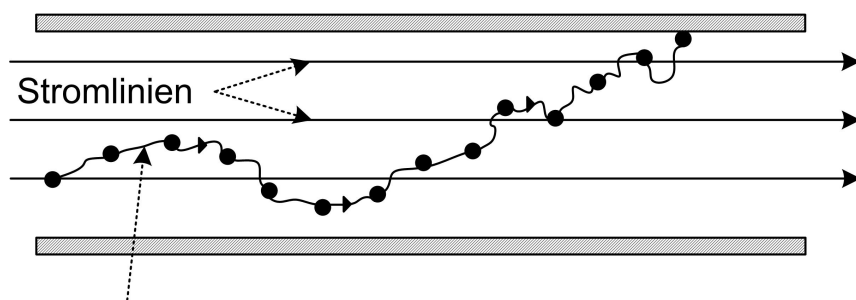
2.5.1 Diffusion

Diffusion ist ein wichtiger Prozess bei der Ablagerung von Aerosol-Partikeln mit Durchmessern zwischen 1 nm und 100 nm. Filtrationsmechanismen, aber auch die Abscheidung kleinster Partikel in der menschlichen Lunge, beruhen hauptsächlich auf dem Effekt der Diffusion [101, 102].

Analog zur Brown'schen Molekularbewegung kann auch bei Aerosolen eine ungeordnete mikroskopische Bewegung der Aerosolpartikel in ruhender Luft beobachtet werden, die als Brown'sche Partikelbewegung bezeichnet wird (vgl. Abbildung 2.4). Die Ursache für diese Bewegung ist ein Impulsaustausch zwischen den sich statistisch bewegenden Gasmolekülen und den dispergierten Partikeln.

Die Diffusion von Aerosolpartikeln ist der Nettotransport dieser Partikel innerhalb eines Konzentrationsgradienten. Dieser Transport erfolgt stets von einer Region mit höherer Konzentration hin zu einer Region mit niedrigerer Konzentration [35, 25].

Diffusionsbedingter Transport kann auch in bewegten Fluiden auftreten. Dieser Transport wird konvektive oder Eddy-Diffusion genannt [103]. Dabei werden die Substanzen in einem turbulenten fluiden System durch Wirbelbewegungen vermischt. Die Partikelgrößen, die durch konvektive Diffusion beeinflusst werden, hängen von der Strömungsgeschwindigkeit und externen Feldkräften ab, befinden sich aber in der Regel ebenfalls im Bereich zwischen 1 nm und 100 nm [104].



Partikelbahn aufgrund Brown'scher Bewegung

Abbildung 2.4 Diffusionsbedingte Partikelabscheidung im durchströmten Rohr

2.5.2 Sedimentation

Für die Sinkgeschwindigkeit eines Partikels im Gravitationsfeld gilt [25]:

$$v_S = \frac{C_C \cdot d_p^2 \cdot \rho_p}{18 \cdot \eta_G} \cdot \vec{g} \quad (2.4)$$

Die Partikelablagerung durch Sedimentation kann aufgrund der in AGR-Kühlern üblicherweise hohen Strömungsgeschwindigkeiten im Rohr vernachlässigt werden. Die Partikel bewegen sich mit Gasgeschwindigkeit in der Strömung. Im Vergleich dazu ist die Sinkgeschwindigkeit der Partikel zu gering, als dass sie vor Verlassen des Rohres bis zur Wand sinken (vgl. Abbildung 2.5). Zudem kann durch Vertikaleinbau des Kühlers dieser Mechanismus komplett ausgeschlossen werden.

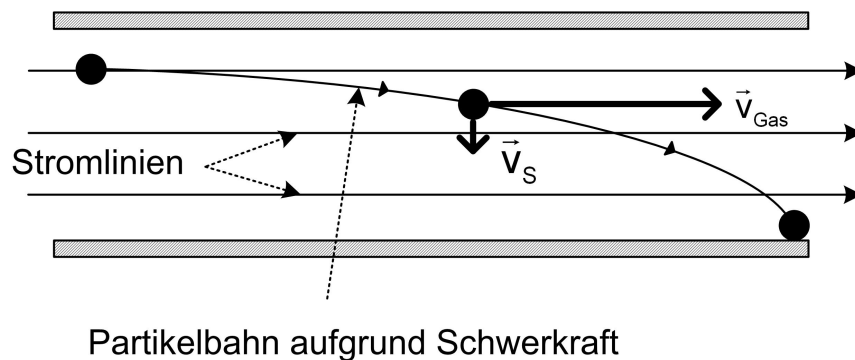


Abbildung 2.5 Einfluss der Schwerkraft auf die Partikelbewegung

2.5.3 Elektrostatische Abscheidung

Aufgrund von Ladungen auf den Dieselrußpartikeln können elektrische Kräfte auf das Aerosol wirken. Man unterscheidet die elektrischen Einflüsse in Ablenkungen in einem externen elektrischen Feld, Bildladungs- sowie Raumladungseffekte. Für die Ablagerungsgeschwindigkeit im elektrischen Feld \vec{E} gilt:

$$v_{el} = Z_p \cdot \vec{E} \quad (2.5)$$

mit:

$$Z_p = \frac{n \cdot e_0 \cdot C_C}{3 \cdot \pi \cdot \eta_G \cdot d_p} \quad (2.6)$$

Die elektrische Mobilität Z_p hängt dabei von der Zahl der Ladungen pro Partikel n ab. Für die spezielle Anwendung eines AGR-Kühlers hat die elektrische Abscheidung jedoch keine signifikante Auswirkung [25, 67].

2.5.4 Kondensation

Unterschreitet die Wandtemperatur im AGR-Kühler den Taupunkt der im Abgas enthaltenen unverbrannten Kraftstoffbestandteile, von Schwefelsäure oder Wasserdampf, so können diese Abgasbestandteile kondensieren. Dabei wird Wärme freigesetzt und auf die Kühlerwand übertragen. Man kann zwei Arten von Kondensation unterscheiden [105, 106]:

- **Filmkondensation:** Diese Form der Kondensation tritt am häufigsten auf, vor allem auf sauberen Oberflächen. Dabei bildet sich ein geschlossener Flüssigkeitsfilm auf der gekühlten Wand.
- **Tröpfchenkondensation:** Bei dieser Form der Kondensation bilden sich einzelne Tröpfchen, die sich über die Oberfläche bewegen können. Tröpfchenkondensation tritt meist auf verschmutzten Oberflächen auf, die eine vollständige Benetzung und damit Filmbildung verhindern.

Auf diese Art entsteht im Abgaswärmetauscher auf der gaseitigen Wand eine klebrige Schicht, in welche sich Rußpartikel einlagern und so das Ablagerungswachstum fördern können [83, 107, 108].

2.5.5 Diffusiophorese

Durch die Kondensation entsteht ein Konzentrationsgradient in der Gasphase und die Dampfmoleküle beginnen in Richtung Kühlerwand zu diffundieren. Befinden sich Partikel in der Gasphase, so erfahren sie eine Kraft in Richtung des Diffusionsstromes. Durch Stöße der Dampfmoleküle mit den Rußpartikeln werden die Partikel in Richtung Wand bewegt und so abgelagert. Die so induzierte Partikelbewegung wird als Diffusiophorese bezeichnet [109, 110].

Knudsen-Zahl

Die dimensionslose Knudsen Zahl Kn setzt die mittlere freie Weglänge eines Partikels λ mit seinem Durchmesser d_p in Relation:

$$Kn = \frac{2 \cdot \lambda}{d_p} \quad (2.7)$$

Dabei werden nach Brock [111] drei Regimes unterschieden:

- Molekularbereich: $Kn \gg 1$
- Übergangsbereich: $Kn \approx 1$
- Kontinuumsbereich: $Kn \ll 1$

Für kleine Partikel ($Kn \gg 1$) kann der Effekt der Diffusiophorese durch einen Impulsaustausch zwischen diffundierenden Gasolekülen und Partikeln erklärt werden. Für große Partikel ($Kn < 1$) wird die Diffusiophorese kontinuumsmechanisch durch die Umströmung mit den diffundierenden Gasmolekülen beschrieben [25, 112, 111, 113]. Die treibende Kraft hinter der Diffusion der Gasmoleküle ist in diesem Fall der Konzentrationsgradient, der im Gas entsteht, sobald eine schwerflüchtige Komponente an der Kühlerwand auskondensiert und somit dem Gasstrom entzogen wird. Die Wirkung der Diffusiophorese ist unabhängig von der Partikelform [114].

Die wichtigsten Einflussgrößen für diesen Mechanismus sind der Kondensatmassenstrom, bzw. der Dampfdruckgradient sowie die Gasgeschwindigkeit bzw. die Verweilzeit der einzelnen Komponenten im Kühler [115]. Grundsätzlich wird Kondensation sowohl durch hohen Druck, hohe Dampfkonzentration als auch niedrige Wand- und Gastemperaturen begünstigt.

Abbildung 2.6 soll die Wirkung der Diffusiophorese verdeutlichen: Zunächst tritt das heiße Abgas, das Partikel und z.B. Wasserdampf enthält, in den Kühler ein. Zwischen dem heißen Gas und der kalten Wand bildet sich ein Temperaturgradient ∇T aus (A). Liegt die Wandtemperatur unterhalb des Taupunktes von Wasserdampf bei den gegebenen Bedingungen, so kondensiert der Dampf und bildet einen Film auf der Kühlerwand. Da damit direkt über der Wand die Dampfkonzentration im Gas gegen den Wert 0 geht, entsteht ein Konzentrationsgradient ∇c für den Wasserdampf (B). Nach dem Fick'schen Gesetz (vgl. Gleichung 4.36) ist der Dampf bestrebt, diesen Konzentrationsgradienten durch Diffusion auszugleichen, die Moleküle bewegen sich vom heißen Gas in Richtung kalter Wand und induzieren so eine gerichtete Diffusion. Dabei stoßen die sich zur Wand bewegenden Wassermoleküle mit den Rußpartikeln zusammen, üben dadurch eine Kraft \vec{F}_{DP} auf die Partikel aus und transportieren diese so in Richtung Wand. Dort werden die Partikel abgelagert und bilden mit dem Kondensatfilm eine Ablagerungsschicht (C). Genauso verhält es sich bei der Kondensation von HC- oder Schwefelsäuredampf.

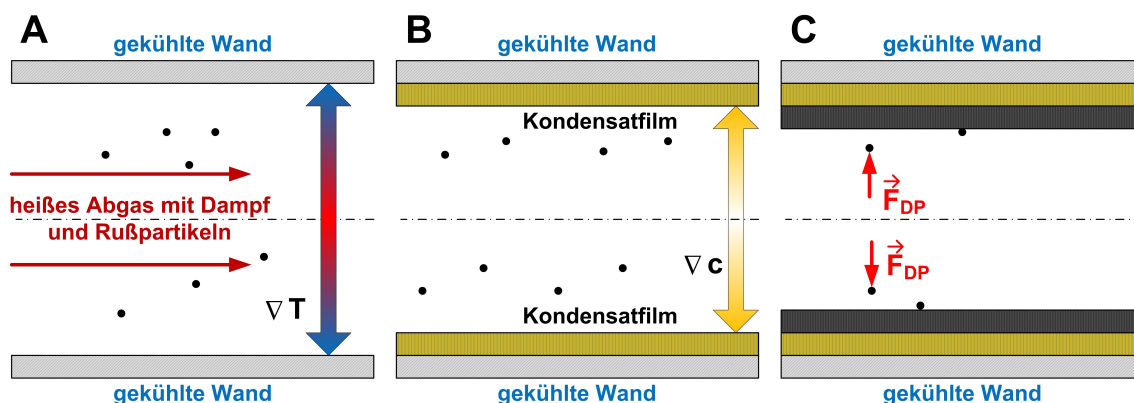


Abbildung 2.6 Schematische Darstellung der Diffusiophorese

2.5.6 Thermophorese

Aufgrund des im Wärmetauscher zwangsläufig auftretenden Temperaturgradienten liegt die Vermutung nahe, dass die Partikelablagerungen vor allem auf Thermophorese zurückgeführt werden können. Der Temperaturgradient ist bedingt durch hohe Gas- und niedrige Wandtemperaturen. Dabei hängt die Wandtemperatur vor allem von der Temperatur des Kühlmittels und dem kühlmittelseitigen Wärmeübergang ab. Dafür sind einerseits die im Vergleich zur Kühlmittelseite nur relativ geringen Wärmeübergangskoeffizienten auf der Gasseite verantwortlich. Andererseits trägt dazu die geringe Wärmekapazität des Abgases bei.

Partikel, die in einem bewegten Luftstrom mitgeführt werden, der einen Bereich mit ausgebildetem Temperaturgradient durchquert, erfahren eine Beschleunigung in Richtung der kühleren Wand und können dort abgeschieden werden. Moleküle, die aus Richtung einer heißen Oberfläche transportiert werden, besitzen eine größere kinetische Energie als solche, die aus Richtung einer kalten Oberfläche befördert werden. Die Energiedifferenz zwischen den kalten und warmen Molekülen führt zu einer Nettokraft, die auf den im Luftstrom transportierten Partikel wirkt und ihn so in Richtung der kalten Wand bewegt [116]. Der Transport von Partikeln wird dabei durch große Temperaturgradienten ∇T sowie geringe Strömungsgeschwindigkeiten begünstigt [117, 118]. Abbildung 2.7 zeigt den thermophoretischen Partikeltransport.

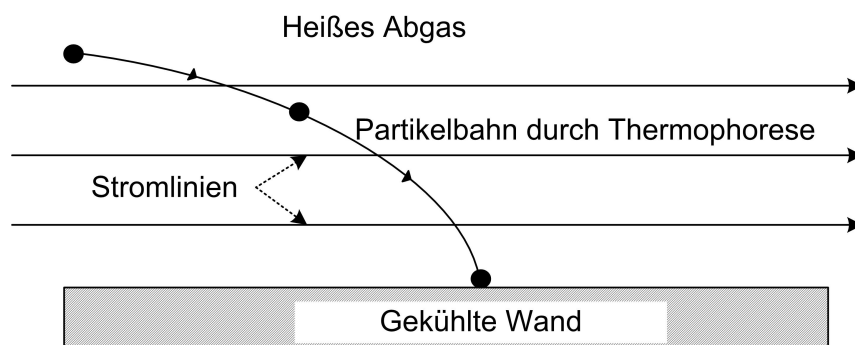


Abbildung 2.7 Partikelbahn aufgrund des im Rohr bestehenden Temperaturgradienten

Die resultierende thermophoretische Geschwindigkeit v_{th} ist unabhängig von der Partikelgröße [115]. Sie kann mit Hilfe des thermophoretischen Koeffizienten K_{th} nach der Gleichung von Talbot bestimmt werden [119, 120, 121]:

$$v_{th} = -K_{th} \frac{\eta_G \cdot \nabla T}{\rho_G \cdot T_p} \quad (2.8)$$

2.5.7 Impaktion

Neben temperaturbedingter und durch Stofftransport verursachter Abscheidung von festen und flüchtigen Abgaskomponenten kommt es auch zur Partikeldeposition, die vom Strömungszustand beeinflusst wird. In Abhängigkeit von der Masse und Größe der einzelnen Partikel, der Wärmetauschergeometrie und der Strömungsgeschwindigkeit können auch Impaktionsvorgänge bei der Ablagerungsbildung eine große Rolle spielen.

Impaktion ist ein Spezialfall von gekrümmter Bewegung. Wird ein Aerosol durch eine Düse geleitet und trifft der austretende Strahl auf eine flache Platte, auch Impaktorplatte genannt, so lenkt diese den Strahl um (vgl. Abbildung 2.8). Die Stromlinien folgen einer abrupten 90°-Kurve. Im Gasstrom suspendierte Partikel, deren Trägheit einen bestimmten Wert überschreitet, können den Stromlinien nicht mehr folgen und schlagen auf der flachen Platte auf. Die Partikel werden so auf der Platte abgelagert. Kleinere Partikel können den Stromlinien folgen und treffen deshalb nicht auf der Platte auf [35]. Dieser Effekt tritt vor allem bei Partikeln auf, die größer als 1 μm sind [104]. Ausschlaggebend für das Trägheitsphänomen ist die Stokes-Zahl:

$$Stk = \frac{\rho_p \cdot d_p^2 \cdot v_G \cdot C_C}{9 \cdot \eta_G \cdot d_c} \quad (2.9)$$

Stk ist abhängig von der Partikeldichte ρ_p , dem Partikeldurchmesser d_p , der Gasgeschwindigkeit v_G , dem Cunningham-Slip-Faktor C_C , der kinematischen Viskosität der Luft η_G und der charakteristischen Abmessung der Strömungsumlenkung d_c .

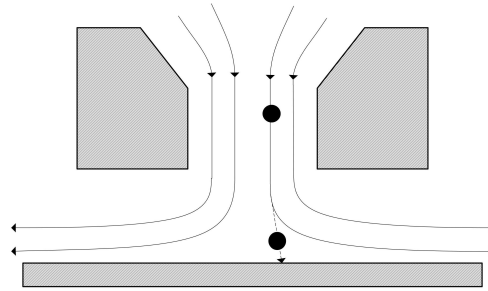


Abbildung 2.8 Abscheidung eines Partikels aufgrund von Impaktion

Nur für Stokes-Zahlen $Stk > 1$ ergibt sich ein signifikanter Beitrag der Impaktion zur Partikelabscheidung [25, 35]. Jedoch können auch dann Partikel durch Impaktion abgelagert werden, wenn der Winkel der Strömungsumlenkung kleiner als 90° ist.

2.5.8 Interzeption

Ablagerung durch Interzeption tritt auf, wenn ein Partikel einer Stromlinie im Gas folgt, die in einem Abstand von weniger als dem halben Partikeldurchmesser ein Hindernis umströmt (vgl. Abbildung 2.9). Beim Umströmen verläuft die Bahnlinie so nahe am Filtermedium vorbei, dass der Partikel das Strömungshindernis an der Oberfläche tangiert und haften bleibt, ohne dabei die Bahnlinie zu verlassen. Der Partikel wird so aufgrund seiner endlichen Größe festgehalten. Interzeption ist unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit und vor allem für Partikel großer Abmessung und geringer Trägheit, wie z.B. die großen, mehrere 100 nm messenden Rußagglomerate, relevant [25, 35].

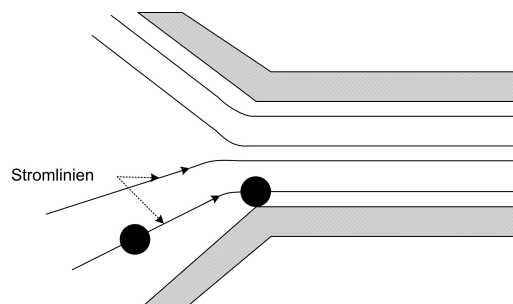


Abbildung 2.9 Abscheidung eines Partikels aufgrund von Interzeption

2.5.9 Einfluss des Strömungszustandes

Neben den bereits genannten Transportmechanismen muss zusätzlich der Einfluss des im betrachteten System ausgebildeten Strömungszustands auf die Ablagerungsbildung betrachtet werden.

Laminare Strömung

Die wichtigsten Mechanismen für die Ablagerung von Aerosolpartikeln mit Durchmessern kleiner $1\ \mu\text{m}$ aus laminaren Strömungen sind die Brown'sche Diffusion und Schwerkraftsedimentation, solange die Partikel klein und elektrisch ungeladen sind. Dabei unterscheidet sich in einer stabilen laminaren Strömung das durch Diffusion und Sedimentation hervorgerufene Ablagerungsverhalten abhängig von der Kühlergeometrie (z.B. zylindrische Rohre, rechteckige Kanäle) [122].

Grundsätzlich nimmt der Diffusionseinfluss mit abnehmender Partikelgröße zu, im Gegensatz zur Ablagerung durch Impaktion, die mit der Partikelgröße zunimmt. Deshalb gibt es einen Übergangsbereich an Partikelgrößen, in dem beide Mechanismen auftreten, jedoch keiner dominiert [123]. Trotzdem können Partikel auch durch elektrostatische Kräfte abgeschieden werden [124].

Turbulente Strömung

Durch die Erhöhung der Reynoldszahl bildet sich eine turbulente Strömung aus. In turbulenter Strömung nimmt die Ablagerungsbildung in der Regel zu, da sich mit steigender Reynoldszahl gleichzeitig der Partikelmassenstrom bei einer konstanten Partikelkonzentration erhöht [83]. Sehr hohe Strömungsgeschwindigkeiten und damit sehr große Reynoldszahlen können jedoch auch zum Ausblasen von Ablagerungen führen [125]. Zudem nimmt mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit die Verweilzeit im Kühler ab, was wiederum zu einer Reduzierung der Ablagerungsbildung führen kann.

Kleinere Partikel ($d_p < 100$ nm) weisen in einem turbulenten System eine höhere Abscheideeffizienz auf, als in einem laminar durchströmten, da sie den für turbulente Strömungen charakteristischen Verwirbelungen folgen und so an die Wand getragen werden können. Größere Partikel ($d_p > 1$ μ m) dagegen besitzen eine größere Trägheit und können deshalb den Verwirbelungen nicht folgen und werden so an die Wand getragen, sie besitzen also in einer turbulenten Strömung ebenfalls eine höhere Abscheideeffizienz als in einer laminaren [126, 124].

2.5.10 Anwendungen der Partikelabscheidung

Die Problematik der Verschmutzung von Wärmetauscheroberflächen ist auf alle Einsatzgebiete der Wärmeübertragung mit partikelhaltigen Medien übertragbar [127]. Viele Anwendungen nutzen die wirkenden Mechanismen aber auch, um gezielt Partikel aus einem Gasstrom abzuscheiden, z.B. bei der Rauchgasreinigung von Holzfeueranlagen [128, 129] oder zur Sammlung von Aerosolpartikeln [130].

2.6 Die Ablagerungsschicht

Im AGR-Kühler wird durch Fouling eine Ablagerungsschicht gebildet, sobald der Kühler vom mit Partikeln und anderen Stoffen beladenen Abgas durchströmt wird. Dadurch reduziert sich rasch die Kühlleistung. Das Wachstum zeigt in der Regel einen exponentiell Verlauf, bis nach etwa 50 bis 200 Stunden ein Gleichgewichtszustand zwischen Ablagerung und Wiederablösung erreicht wird [69]. Für dieses Geschehen gibt es zwei mögliche Theorien:

2.6.1 Reduktion des Schichtwachstums durch isolierenden Effekt

Der erste Ansatz geht davon aus, dass sich durch den Aufbau der Ablagerung eine isolierende Randschicht ausbildet. Dadurch nimmt die Temperatur auf der Gasseite zu. Nach ausreichend langer Zeit nimmt die Oberfläche eine Temperatur an, bei

der sich keine weiteren Ablagerungen bilden können. Somit erreicht der Prozess den Gleichgewichtszustand [131].

Zum Aufbau der Ablagerungsschicht tragen sowohl die Rußpartikel als auch die kondensierbaren gasförmigen Abgasbestandteile bei. Die Dämpfe kondensieren und haften an der Wand aufgrund der niedrigen Wandtemperaturen. Die Rußpartikel werden durch die in Kapitel 2.5 beschriebenen Mechanismen zur Wand transportiert. Dort sorgen Haftkräfte dafür, dass die Partikel dort kleben bleiben.

Der Prozess der Ablagerungsbildung kann in zwei Phasen unterteilt werden. Auf einer trockenen, nicht klebrigen Wand haften die Rußpartikel nur schlecht. Daher wird ein Kontaktmedium (z.B. hochsiedende Kohlenwasserstoffe) zwischen Wandoberfläche und Partikel benötigt, um eine Ablagerungsschicht aufzubauen. Während der ersten Phase der Ablagerungsbildung kondensieren hochsiedende Kohlenwasserstoffe auf der Kühlerwand aus und bilden eine dünne klebrige Schicht, auf der die Rußpartikel gut haften bleiben. Die Ablagerungen wachsen in der zweiten Phase dann kontinuierlich durch die Integration weiterer Rußpartikel in die Schicht an. Mit zunehmender Schichtdicke setzt eine isolierende Wirkung ein. Dies führt zu einem Anstieg der Oberflächentemperatur wodurch die weitere Ablagerungsbildung durch Effekte wie z.B. Thermophorese reduziert wird [131]. Zudem trocknet die Schicht aus, wodurch die Adhäsionskraft verringert und der Gleichgewichtszustand erreicht wird.

2.6.2 Wiederablösung der Ablagerungsschicht

Beim sogenannten Kern-Seaton-Modell wird davon ausgegangen, dass zusätzliche Effekte auftreten, die die Schicht wieder ablösen können. Sobald die Entfernungsrates proportional zur Aufbaurate ist, stellt sich ein quasistationärer Zustand ein [132].

Zu den Schicht ablösenden Effekten zählen unter anderem:

- Auswaschen: Niedrige Wandtemperaturen führen im AGR-Kühler zu Kondensation von Wasser, Säure oder HC. Ist dieser Effekt stark ausgeprägt, so bildet

sich ein flüssiger Film auf der Kühlerwand, wodurch die abgelagerten Partikel aus dem Kühler transportiert werden können [69].

- Ablösung durch Scherkräfte: Gerade unter turbulenten Strömungsbedingungen können Ablagerungen durch Scherkräfte, die größer werden als die auf die anhaftenden Partikel wirkenden van-der-Waals-Kräfte, von der Wand abgelöst werden [133, 134, 135]. Allerdings ist dies kein dominierender Effekt.
- Rissbildung: Trocknen und verhärten die Ablagerungen mit der Zeit, so kann z.B. thermischer Stress Risse in der Ablagerungsschicht verursachen. Diese ermöglichen, dass Teile der Ablagerungen abgetragen werden können [69].
- Verdampfen oder Oxidation: Es ist möglich, dass Teile der Ablagerungen aus semiflüchtigen Komponenten bestehen. Unter bestimmten Bedingungen können Temperaturen auftreten, die hoch genug sind, dass diese Komponenten verdampfen. Eine Oxidation der Rußschicht würde Gastemperaturen über 500 °C erfordern, die im AGR-Kühler aber in der Regel nicht auftreten [131, 69].

2.6.3 Eigenschaften der Ablagerungsschicht

Die Struktur der Ablagerungsschicht ist abhängig von den Entstehungsbedingungen sowie ihrer Zusammensetzung. Der Anteil an Ruß, Wasser, HC und Säure sowie der Alterungsprozess bestimmen, ob die Ablagerungen trocken und sehr porös, feucht und ölig oder hart und spröde sind. Es konnte beobachtet werden, dass trockener, poröser Ruß weniger hartnäckige Verschmutzungen verursacht, als schwerer, feuchter Ruß. Ist der Anteil an Säure in den Ablagerungen hoch, so kann durch ihre korrosive Wirkung das Kühlermaterial angegriffen werden. Zudem können die Säuren mit den Kohlenwasserstoffen reagieren und so dazu führen, dass die Ablagerungen verhärten und verspröden [40, 69]. Für die Veränderung der Wärmetransporteigenschaften der Ablagerungsschicht sind deren Dichte und Porosität von Bedeutung [131].

3 EXPERIMENTELLER TEIL

3.1 Modellgasprüfstand

3.1.1 Aufbau

Einen wichtigen Bestandteil der vorliegenden Arbeit stellt die experimentelle Untersuchung der Partikelabscheidung in AGR-Kühlern dar. Dabei sollten die wichtigsten Einflussgrößen unabhängig von einem Motorenprüfstand unter Nutzung von Modellabgasaerosolen isoliert betrachtet werden.

Dazu wurde ein Prüfstand errichtet, der die Nachbildung der Rußemissionen eines Dieselmotors ermöglicht. Ein Schema des Aufbaus ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Der Aufbau ist so gestaltet, dass prinzipiell verschiedene Wärmetauschermodelle ohne aufwändige Umbaumaßnahmen integriert und so deren Abscheideeffizienzen ermittelt werden können.

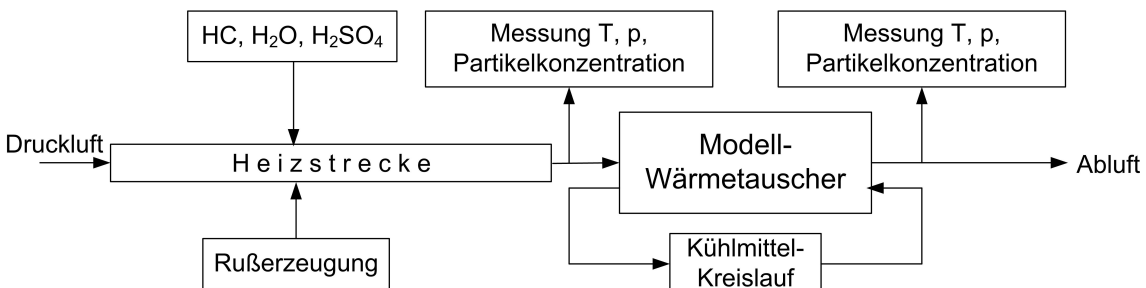


Abbildung 3.1 Schema Prüfstandsaufbau

Zur Abgasnachbildung wird partikelfreie Druckluft mittels Ofen (Carbolite 1200 °C, Barloworld Scientific) und Rohrheizung (Heizschnüre HSQ, Temperaturregler HT40, Hillesheim AG) auf die gewünschte Abgastemperatur von bis zu 450 °C gebracht. Der Luftmassenstrom ist dabei mittels Massendurchflussmesser (red-y smart meter GSM, Vögtlin Instruments AG) bis zu einem Wert von 15 kg h⁻¹ frei einstellbar, wodurch eine Variation der Strömungsgeschwindigkeiten im Wärmetauscher möglich ist. Typische Reynoldszahlen liegen dabei zwischen 5.000 < Re < 10.000.

3.1.2 Modellkühler

Für die Untersuchungen wurde von den an den Arbeiten beteiligten Projektpartnern des Lehrstuhls für Verbrennungskraftmaschinen der TU München (LVK) ein Modellkühler konstruiert, der eine einfache Analyse der Ablagerungen zulässt [136]. Es handelt sich dabei um einen Doppelrohrwärmetauscher, der innen vom heißen Gas und außen vom Kühlmittel durchströmt wird. Abbildung 3.2 zeigt einen Querschnitt durch den Kühler.

Das verwendete Kühlmittel ist eine Wasser-Frostschutzmischung (Glyantin, BASF), das Mischungsverhältnis beträgt 3 : 2. Ein Thermostat (K20/DC1, Haake) erlaubt die Einstellung verschiedener, konstant haltbarer Kühlmitteltemperaturen.

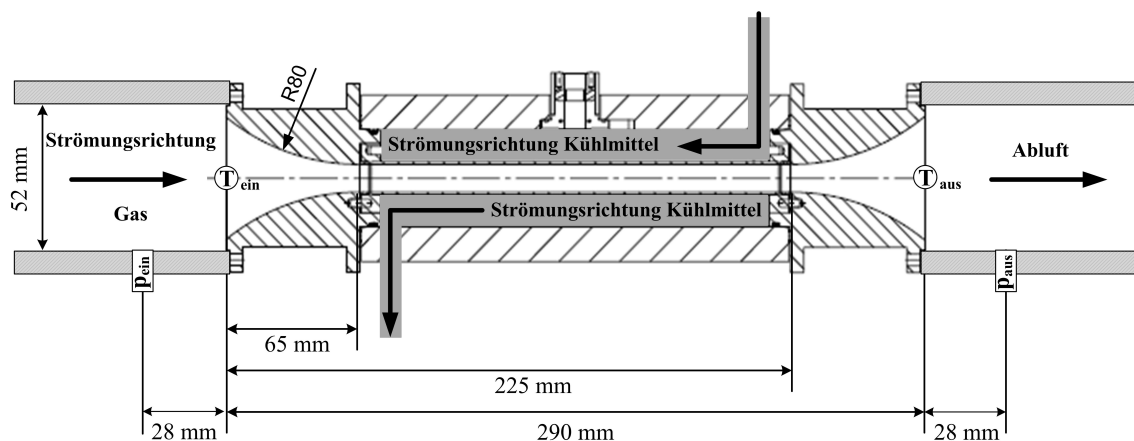


Abbildung 3.2 Querschnitt durch den Modellkühler. Dargestellt sind die wichtigsten Abmessungen, die Positionen der Thermoelemente zur Bestimmung der Gastemperaturen und der Drucksensoren sowie die Strömungsrichtungen

Der Kühler wird mit einem konstanten Kühlmittelstrom von 4 L min^{-1} im Gegenstrom betrieben. Der Kühler wurde so konstruiert, dass das Kühlerrohr (Aluminium, Länge 160 mm, Außendurchmesser 12 mm, Wandstärke 1 mm) einfach ausgebaut und ausgetauscht werden kann.

Die Gas- und Kühlmitteltemperaturen werden mit drei Thermoelementen (Typ K, HKMTSS-IM150U-150, Newport Omega) bestimmt, die sowohl am Kühlerrein- und -austritt als auch in der Kühlmittelzuleitung installiert sind. Die genaue Platzierung der Thermoelemente zur Bestimmung der Gastemperaturen ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Mittels zweier Drucksensoren (CTE 7000, SensorTechnics) wird der Druck vor und nach dem Kühler bestimmt.

3.1.3 Rußerzeugung

Für die Erzeugung der benötigten Rußpartikel stehen sowohl ein Graphitfunken-aerosol-Generator (GfG) als auch ein Propanbrenner zur Verfügung.

Graphitfunken-aerosol-Generator

Im Graphitfunken-aerosol-Generator (GfG 1000, Palas GmbH) werden Rußpartikel durch Funkenentladungen zwischen zwei hochreinen Graphitelektroden unter einem Argonstrom erzeugt (vgl. Abbildung 3.3). Infolge des Funkenüberschlags zwischen den beiden Elektroden entstehen Kohlenstoffprimärpartikel mit einem Durchmesser zwischen 5 nm und 15 nm. Während des Abtransports im Argonstrom unterliegen diese einem Agglomerationsprozess. So entsteht schließlich ein Aerosol, das in Bezug auf seine Partikelgrößenverteilung mit dem von Dieselmotoren emittierten Abgas vergleichbar ist. Bei der höchsten Funkenfrequenz (300 Hz) werden maximal 7 mg h^{-1} an Rußpartikeln erzeugt [137].

Die Rußpartikel, die vom Argonstrom aus dem Gerät gespült werden, werden kurz nach dem Ofen in den heißen Luftstrom eingebracht. Dabei liegt der Druck, mit dem der Argonstrom den GfG verlässt, geringfügig über dem Systemdruck, um eine

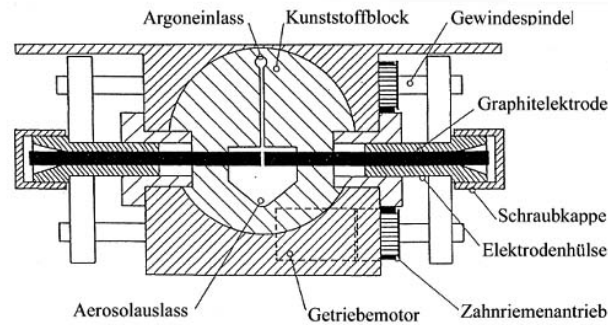


Abbildung 3.3 Graphitfunken-Generator

Rückströmung von heißer Luft zu verhindern. Heiße Luft und kaltes Aerosol werden bis zum Eintritt in den Wärmetauscher vermischt, wobei sich die Temperaturen der Gasströme angleichen. Das Aerosol setzt sich somit bei diesen Messungen aus temperierter Druckluft, Argon (3 Vol-%) sowie den GfG-Rußpartikeln zusammen.

Propanbrenner

Im Brenner wird Flammruß durch eine unvollständige Verbrennung des Propan nach dem CAST-Prinzip erzeugt [138]. Dabei wird die Flamme etwas oberhalb des Brenners von einem Quenchluftstrom gelöscht, um den Verbrennungsprozess zu unterbrechen (vgl. Abbildung 3.4). Dadurch entsteht ein Aerosolstrom, dessen Anzahlkonzentration und Größenverteilung durch Anpassung der Gasströme variiert werden können. Mit Hilfe dieses Brenners ist es möglich, ein Rußaerosol zu erzeugen, das in der Größenverteilung der des verwendeten Dieselmotors entspricht [139].

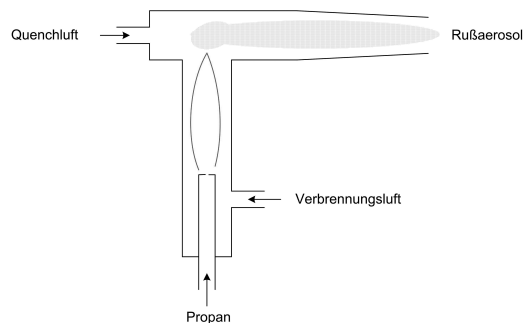


Abbildung 3.4 Schema Propanbrenner

3.1.4 Aerosolcharakterisierung

Die Partikelgrößenverteilung für Rußpartikelagglomerate mit elektrischen Mobilitätsdurchmessern d_m im Bereich von $10 \text{ nm} < d_m < 600 \text{ nm}$ wurde am Modellprüfstand mittels SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) bestimmt. Um sicher zu stellen, dass das Modellaerosol einem realen Dieselabgas entspricht, wurden die Messungen auch am Motorenprüfstand des LVK durchgeführt, wie es im Rahmen des gemeinsam bearbeiteten Projektes vorgesehen war.

Für die Messungen wurde an beiden Prüfständen je ein Teilstrom des Abgases bzw. Modellaerosols entnommen. Die Probenahme erfolgte dabei aus dem Vollstrom. Es wurde eine Sonde verwendet, die in Form, Anordnung und Position der EU-Richtlinie 1999/98/EG für die Untersuchungen von Abgasemissionen entspricht [140]. Dabei handelt es sich um ein L-förmig gebogenes Rohr mit einem Innen- bzw. Außendurchmesser von 8 mm bzw. 10 mm, an dessen unteren Ende eine Düse mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,75 mm angebracht ist. Wie in Abbildung 3.5 dargestellt, ist die Öffnung der Sonde der Gasströmungsrichtung entgegen gerichtet. Nach der Entnahme wurde der Probenstrom mit Hilfe einer Verdünnungsstufe im Verhältnis 1:10 verdünnt und anschließend mit dem SMPS die Größenverteilung bestimmt.

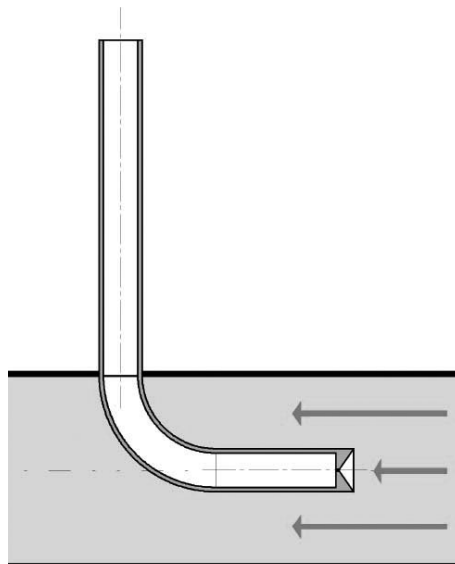


Abbildung 3.5 Probenahmesonde

Das SMPS beruht auf dem Verfahren der elektrostatischen Klassifizierung. Dabei werden die Aerosolpartikel aufgrund unterschiedlicher elektrischer Mobilitäten in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser bei gleicher Ladung in verschiedene Größenklassen aufgeteilt [141]. Als Bezugsgröße wird dafür der Mobilitätsdurchmesser d_m herangezogen. Der Mobilitätsdurchmesser eines beliebig geformten Aerosolpartikels entspricht dabei dem Durchmesser einer Kugel, die bei gleicher externer Kraft die gleiche Widerstandskraft und folglich finale Geschwindigkeit erreicht [25].

Das verwendete SMPS setzt sich aus einer β -Strahlenquelle, einem differentiellen Mobilitätsanalysator (DMA) sowie einem kontinuierlichen Kondensationskernzähler (CNC) zusammen. Das zu untersuchende polydisperse Rußaerosol wird dem DMA zugeführt. Dort werden die Rußpartikel zunächst in einer ^{85}Kr -Quelle mit einer Aktivität von 2 mCi auf eine bipolare Ladungsverteilung gebracht [25]. Die Strahlung der Quelle ionisiert die Trägergasmoleküle, welche die Partikel umgeben, die ihrerseits durch das Prinzip der bipolaren Aufladung die Partikel in ein Ladungsgleichgewicht nach Boltzmann bringen [142].

Das so aufgeladene Aerosol lässt sich anschließend im DMA trennen. Der DMA besteht aus einem ringförmigen Hohlraum, der von zwei konzentrisch ineinander angeordneten Zylindern gebildet wird. An diese beiden Zylinder wird Hochspannung angelegt, wodurch sich im Hohlraum zwischen den Zylindern ein elektrisches Feld ausbildet. Zwischen den beiden Zylindern strömen gefilterte Luft (Schleierluft) sowie das polydisperse Aerosol. Die Volumenströme von Schleierluft und polydisperssem Aerosol bilden dabei ein Verhältnis von 10 : 1 [143].

Das geladene Prüfaerosol wird an der inneren Wand der äußeren Elektrode in den Hohlraum eingebracht. Die geladenen Partikel werden durch das elektrische Feld in Richtung der inneren Elektrode abgelenkt und erfahren einen Widerstand durch die Schleierluft. Dadurch erreichen sie schnell eine endgültige Geschwindigkeit, die sich aus der elektrischen Mobilität der Partikel ergibt. Abhängig von der angelegten Spannung sind nur Partikel in einem eingeschränkten Mobilitätsbereich und damit Größenbereich in der Lage, derjenigen Stromlinie zu folgen, die ein Verlassen des Classifiers durch einen Ringspalt ermöglicht [42]. Durch Variation der Hochspannung

am DMA wird während der Messung innerhalb von 240 s ein Größenbereich von 14 nm bis 800 nm durchlaufen.

Die Quantifizierung der Anzahlkonzentration der im DMA selektierten Partikelgrößenfraktion erfolgt schließlich im Kondensationskernzähler. Das Aerosol durchströmt bei einer Temperatur von 37°C einen Zylinder, der mit einer mit n-Butanol getränkten Vliesröhre beschickt ist. Hier nimmt das Aerosol n-Butanol auf, bis der Sättigungsdampfdruck erreicht ist. Anschließend strömt es weiter in eine auf 10°C gekühlte Kondensationskammer, in der sich n-Butanol-Übersättigungen von bis zu 200 % ausbilden. Dies führt zu einer sofortigen heterogenen Nukleation an allen vorhandenen Aerosolpartikeln [25]. Die Partikel wachsen dadurch so stark an, dass sie optisch detektiert werden können. An einem Photodetektor wird das an den Tröpfchen gestreute Licht einer 5 mW starken Laserdiode bei einer Wellenlänge von 780 nm bestimmt und die Partikel auf diese Weise gezählt [144].

3.1.5 Erzeugung unterschiedlich zusammengesetzter Aerosole

Um den Einfluss von Kondensation und Diffusiophorese zu betrachten, wurden dem Rußaerosol verschiedene Additive in unterschiedlichen Konzentrationen zugemischt. Dabei kamen Wasser (H_2O), Schwefelsäure (H_2SO_4) sowie als Modellsubstanz für unverbrannte Kohlenwasserstoffe (HC) n-Dodecan ($C_{12}H_{26}$) und n-Hexadecan ($C_{16}H_{34}$) zum Einsatz. Zudem wurde für die Versottungsversuche handelsüblicher Diesel verwendet. Um den Effekt der HC-Kondensation deutlicher heraus zu arbeiten und Effekte eventueller im Diesel vorhandener Verunreinigungen auszuschließen, wurden die Modellsubstanzen ausgewählt. Die Konzentrationen der Additive wurden so gewählt, dass sie die im Dieselabgas üblichen Konditionen abbilden.

Wasserdampfkonzentration

In der Literatur wird meist ein Wasserdampfgehalt im Dieselabgas von 2 % bis 8 % angegeben [11]. Ein Massenanteil von Wasserdampf von mehr als 5 % kann am Modellprüfstand jedoch nur zu Lasten der Gaseintrittstemperatur (Aufwenden der

3 Experimenteller Teil

Verdampfungsenthalpie) realisiert werden. Deshalb wurden für die Untersuchungen zum Einfluss des vorhandenen Wasserdampfes Konzentrationen von 1 %, 2 % bzw. 5 % ausgewählt.

HC-Konzentration

Die HC-Konzentrationen sind angelehnt an Messwerte, die am Motorenprüfstand des LVK aufgenommen wurden. Dort ergaben sich durch Nacheinspritzung HC-Gehalte von 200 ppm bis 450 ppm. Durch den hohen Wert von 1200 ppm soll ein möglicher Spitzenwert simuliert und der Einfluss hoher HC-Konzentrationen auf die Ablagerungsbildung verdeutlicht werden.

Schwefelsäurekonzentration

Anhand von Umsatzberechnungen von Schwefel zu SO_2 und SO_3 wurde für einen Dieselmotorkraftstoff, der 1000 ppm Schwefel enthält, für die Gasphase ein H_2SO_4 -Gehalt von 3,6 ppm ermittelt. Unter gleichen Umsatzbedingungen gilt für Dieselmotorkraftstoff mit 18 ppm (entspricht dem für den am Motorenprüfstand verwendeten Kraftstoff ermittelten S-Gehalt) ein H_2SO_4 -Gehalt in der Gasphase von 0,065 ppm.

Am Prüfstand wurden H_2SO_4 -Konzentrationen von 0,2 ppm, 0,5 ppm sowie 10 ppm verwendet. Durch die etwas höheren Konzentrationen kann sichergestellt werden, dass auftretende Effekte quantifizierbar sind.

Additivzugabe

Abbildung 3.6 zeigt schematisch die Additivzugabe. Dabei wird das monodisperse Aerosol nach Austritt aus dem DMA über die erwärmte Schwefelsäure (95 °C) oder über eine der HC-Komponenten (80 °C) und anschließend in den Wärmetauscher geleitet. Bei Verwendung von Wasserdampf wird Wasser in die beheizte Zuleitung eingespritzt. Dort verdampft das Wasser, bevor der Ruß eingeleitet wird.

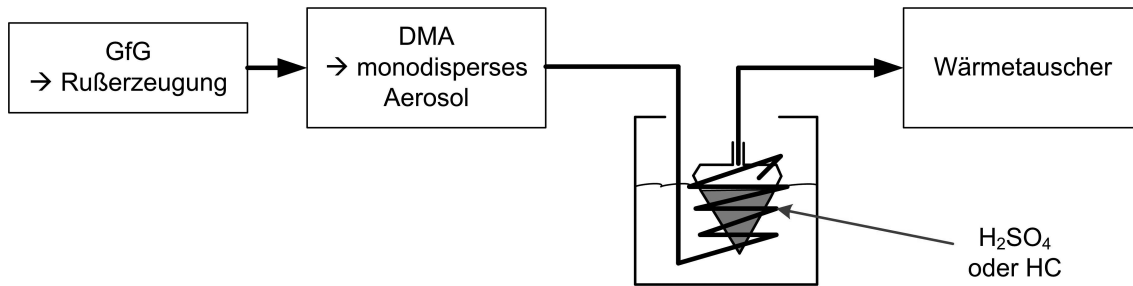


Abbildung 3.6 Schema für die Zugabe von Schwefelsäure und HC

3.2 Chemische Charakterisierung verschiedener Rußproben

3.2.1 Probenahme

Vorbehandlung der Filter

Für die Sammlung von Rußproben werden bindemittelfreie Glasfaserfilter (Durchmesser 70 mm, Machery & Nagel) verwendet. Diese werden entsprechend VDI Richtlinie 2465, Blatt 1 [145] vor der Probenahme mindestens vier Stunden bei 500 °C im Muffelofen ausgeheizt, um anhaftende organische Verunreinigungen zu entfernen und anschließend gewogen. Vor der Probenahme werden jeweils zwei Filter gewogen und in die Halterung eingelegt (Außenluft- und Backup-Filter), um auch bei einem Durchbruch des Außenluftfilters eine korrekte Messung zu gewährleisten. Nach der Probenahme werden die belegten Filter bei Raumtemperatur mindestens 24 h im Exsikkator über Silicagel getrocknet und zur gravimetrischen Bestimmung der abgelagerten Masse erneut gewogen. Anschließend werden die Filter in zwei Hälften geteilt. Eine Hälfte wird unbehandelt für die Bestimmung des Gesamtkohlenstoffgehaltes verwendet, die zweite Hälfte wird wie unten beschrieben zur Bestimmung des elementaren Kohlenstoffgehaltes verarbeitet.

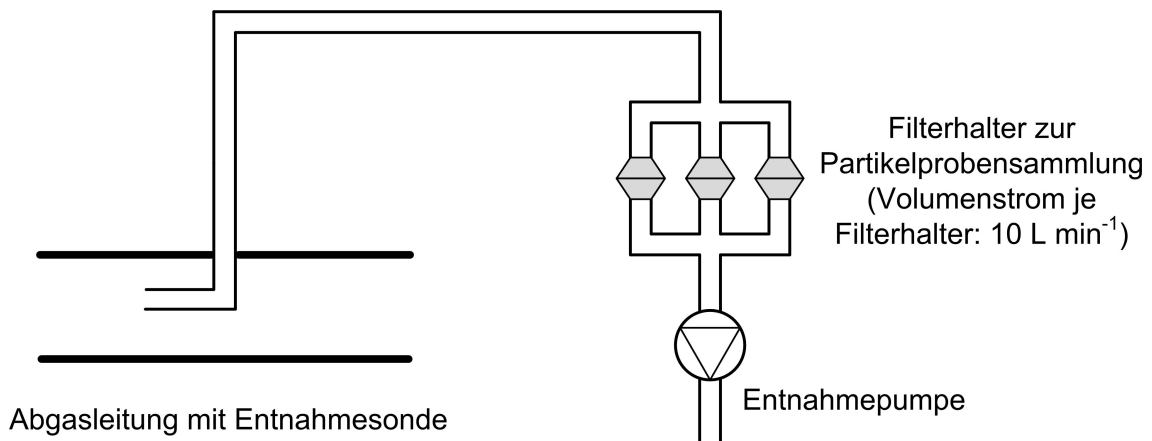


Abbildung 3.7 Schema der Entnahmeeinrichtung für die Probensammlung

Sammelbedingungen

Zur Bestimmung des HC-Gehaltes im Ruß wurde sowohl am Motoren- als auch am Modellprüfstand Ruß gesammelt. Die Probenahme erfolgte dabei aus dem Vollstrom mittels Sonden, die der EU Richtlinie 1999/98/EG [140] entsprechen. Am Motorenprüfstand wurden jeweils drei vorbehandelte Filter parallel beladen und durch jeden Filter 5 min lang ein Volumenstrom von 10 L min⁻¹ gezogen (vgl. Abbildung 3.7). Am Modellprüfstand wurde eine längere Beladungszeit pro Filter gewählt (30 min), da hier die Rußkonzentrationen deutlich geringer waren.

3.2.2 Coulometrische Kohlenstoffbestimmung

Die gesammelten Rußproben werden entsprechend VDI Richtlinie 2465, Blatt 1 [145], untersucht. Dabei wird der HC-Anteil als organischer Kohlenstoff (OC) aus der Differenz des totalen Kohlenstoffanteils (TC) und des elementaren Kohlenstoffanteils (EC) bestimmt. Die Bestimmung des Kohlenstoffgehaltes des auf den Filtern abgeschiedenen Rußes erfolgt durch Verbrennen der Probe unter Sauerstoff und der coulometrischen Detektion des dabei gebildeten CO₂ [146].

Aufbau und Prinzip der Analyseneinheit

Die analytische Kohlenstoffbestimmung beruht auf der Umsetzung kohlenstoffhaltiger Verbindungen bei Temperaturen um 650 °C in einer oxidierenden Atmosphäre zu CO₂ und H₂O.

Die auf dem Filter vorliegenden Proben werden im Ofen I (vgl. Abbildung 3.8) unter Sauerstoffstrom zu CO₂ verbrannt. An die Verbrennungseinheit schließt der Ofen II an, der einen CuO/Pt-Katalysator enthält, mit dessen Hilfe gasförmige Kohlenwasserstoffe und Rußpartikel bei 900 °C nachoxidiert werden. In einem weiteren Ofen (Ofen III) werden eventuell gebildete Schwefeloxide und Chlorwasserstoffe aus dem Gasstrom bei 500 °C entfernt. Die Perhydritvorlage vor dem Absorptionsgefäß dient dazu, die schwefligen Bestandteile des Verbrennungsgases herauszufiltern, da diese sonst die Kohlenstoffanalyse stören würden. Das CO₂ aus dem Verbrennungsrohr gelangt mit dem O₂-Strom in die Absorptionsvorlage und wird in einer alkalischen Bariumperchlorat-Lösung nach



absorbiert.

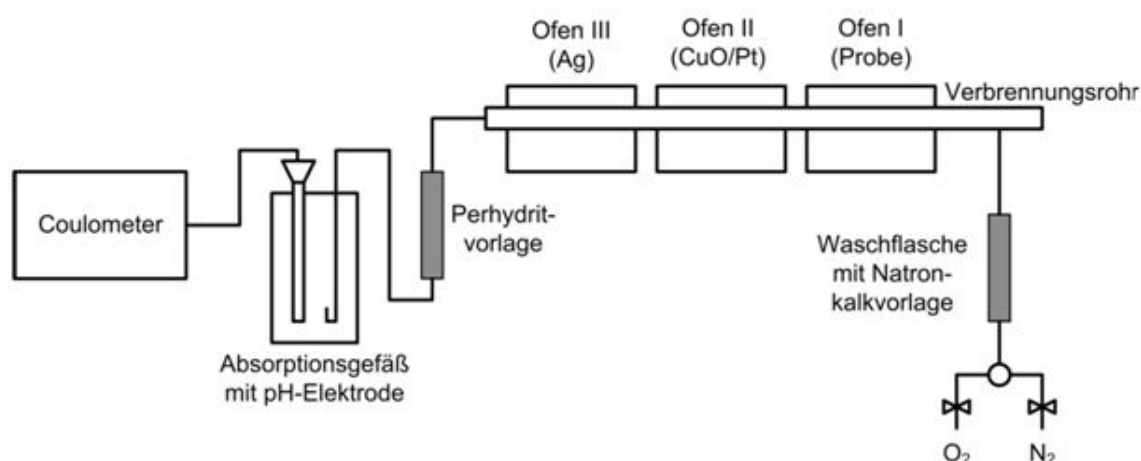
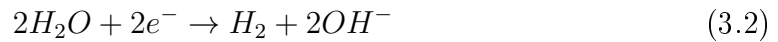


Abbildung 3.8 Schematischer Aufbau des Coulomat 702

Parallel zu diesem Reaktionsverlauf werden bei der Rücktitration die verbrauchten OH^- -Ionen nach



elektrolytisch zurückgebildet. Durch die chemische Reaktion kommt es in der Absorptionslösung zu einer Änderung des pH-Wertes, der mit einer pH-Messelektrode detektiert wird. Der Bariumperchlorat-Lösung werden elektrische Ladungen in Form von Impulsen (1 Impuls entspricht 3,214 mC) zugeführt, um den ursprünglichen pH-Wert (\approx pH 9,6) wieder herzustellen. Aus der benötigten Strommenge wird der Kohlenstoffgehalt der Probe ermittelt. Der Elektrolysestrom wird vom Coulometer in Form von Impulsen angegeben, aus welchen sich nach einer vom Gerätehersteller angegebenen Beziehung der Kohlenstoffgehalt in mg bestimmen lässt. Aus dem so gewonnenen Kohlenstoffgehalt kann zudem der Anteil an nichtkohlenstoffhaltigen sonstigen Bestandteilen der Probe bestimmt werden, da die Einwaage der Probe bekannt ist. Es gilt:

$$\text{Sonstige Bestandteile (mg)} = \text{Einwaage (mg)} - \text{TC (mg)} \quad (3.3)$$

Thermodesorption

Um einer Verpuffung durch eventuell vorhandene Kraftstoffrückstände vorzubeugen, wird bei der Analyse auf den Gesamtkohlenstoffgehalt ein Thermodesorptionsschritt unter Stickstoff vor der eigentlichen Verbrennung durchgeführt. Dabei wird die desorbierbare OC-Fraktion von der Probe entfernt. Dies geschieht durch Erhitzung in einer inerten Atmosphäre (N_2) auf 500°C . Dafür wird das folgende Temperaturprogramm verwendet:

Zunächst hält Ofen I die Betriebstemperatur von 200°C für eine Minute. Dann wird der Ofen innerhalb von sieben Minuten auf 500°C aufgeheizt. Dies entspricht einer

Heizrate von 2571 °C h^{-1} . Während der zweiminütigen Nachtitrationszeit wird der Ofen wieder auf 200 °C abgekühlt.

Analyse auf Gesamtkohlenstoff (TC)

Die Filterprobe wird mit der belegten Seite nach oben in das Verbrennungsrohr (Ofen I) eingebracht. Nach der Thermodesorption wird der verbliebene Kohlenstoff unter Sauerstoff zu CO_2 oxidiert. Dabei wird das folgende Temperaturprogramm verwendet:

Zunächst hält Ofen I die Betriebstemperatur von 200 °C für eine Minute. Dann wird der Ofen innerhalb von sieben Minuten auf 650 °C aufgeheizt. Dies entspricht einer Heizrate von 3857 °C h^{-1} . Während der zweiminütigen Nachtitrationszeit wird der Ofen wieder auf 200 °C abgekühlt.

Flüssigextraktion

Durch eine Flüssigextraktion wird von den noch nicht verwendeten Filterhälften der lösliche organische Kohlenstoff entfernt. Dazu werden diese in 30 ml Petrischalen mit Schliff gelegt und mit jeweils 10 ml einer 50 : 50 Vol.-% Mischung aus 2-Propanol und Toluol mit Hilfe einer Pipette bedeckt. Die Schale wird verschlossen und 24 h bei Raumtemperatur stehen gelassen. Nach der Extraktion wird das Lösungsmittel aus der Schale abpipettiert. Anschließend werden die Filterhälften zunächst im Stickstoffstrom und anschließend im Exsikkator mindestens 24 h über Silicagel getrocknet.

Analyse auf elementaren Kohlenstoff

Nach Abschluss der OC/EC-Trennung wird bei allen Proben der verbleibende Kohlenstoff analog zur TC-Bestimmung durch Verbrennung der Probe gemessen, dazu wird auch dasselbe Temperaturprogramm verwendet.

Berechnung des organischen Kohlenstoffanteils

Aus den Werten des totalen und elementaren Kohlenstoffs lässt sich der Anteil an organischem Kohlenstoff berechnen. Dazu wird der elementare Kohlenstoffanteil vom totalen Kohlenstoffanteil abgezogen:

$$OC = TC - EC \quad (3.4)$$

wobei OC dem Anteil an organischem Kohlenstoff, TC dem Totalanteil an Kohlenstoff und EC dem Anteil an elementarem Kohlenstoff entspricht.

3.2.3 Charakterisierung der Kühlerablagerungen

Mit weiteren Rußproben, die aus den am Motor versotteten Kühlerrohren stammen, wurde ein wässriger Extrakt hergestellt. Dazu wurden die Proben in einer Mischung aus Wasser (dest.) und 2-Propanol (Verhältnis 1 : 1) im Ultraschallbad für 1 h extrahiert.

Durch die Bestimmung des Calcium- (Ca^{2+}) (Flammenphotometrie) und Sulfatgehaltes (SO_4^{2-}) (Ionenchromatographie) sind Rückschlüsse auf die Herkunft der Ablagerungsbestandteile (Motoröladditive, Schwefelsäure) möglich.

3.2.4 Charakterisierung mittels Raman-Spektroskopie

Mit Hilfe von Raman-Spektroskopie können Aussagen über die Struktur und damit auch über die Reaktivität von Rußproben getroffen werden [147].

Raman-Spektroskopie basiert auf inelastischer Lichtstreuung und liefert Fingerabdruckspektren, mit deren Hilfe Verbindungen eindeutig identifiziert werden können. Ruße können so voneinander unterschieden werden. Ein großer Vorteil der Raman-Spektroskopie ist die Möglichkeit, Ruß direkt zu vermessen, ohne dass eine Vor-

behandlung der Proben nötig ist. Zudem handelt es sich um eine zerstörungsfreie Methode bei den verwendeten Bedingungen. Sind jedoch in den zu untersuchenden Ablagerungen viele organische Verbindungen enthalten (dies ist v.a. der Fall wenn die HC-Konzentration hoch eingestellt wird), kann Fluoreszenz die Messungen behindern.

Die Spektren wurden an einem Raman-Mikroskop (Renishaw 2000) aufgenommen. Das Raman-Mikroskop (siehe Abbildung 3.9) besteht aus einem Anregungslaser, einem Mikroskop, einem holographischen Notch-Filter und einem Spektrographen in Kombination mit einer thermoelektrisch gekühlten CCD-Kamera (578 x 385 pixel). Als Anregungslaser wurde ein Ar⁺-Laser mit einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 514$ nm und einer Leistung von 25 mW verwendet.

Das Raman-gestreuete Licht wird über ein Objektiv gesammelt, wobei mittels eines holographischen Notch-Filters die relativ schwache Raman-Streuung vom intensiven Rayleigh-Hintergrund abgetrennt wird. Nachdem das Streulicht einen verstellbaren Spalt passiert hat, gelangt es in das Spektrometer. Dort wird es an einem optischen Gitter dispersiert und anschließend über die CCD-Kamera detektiert [147].

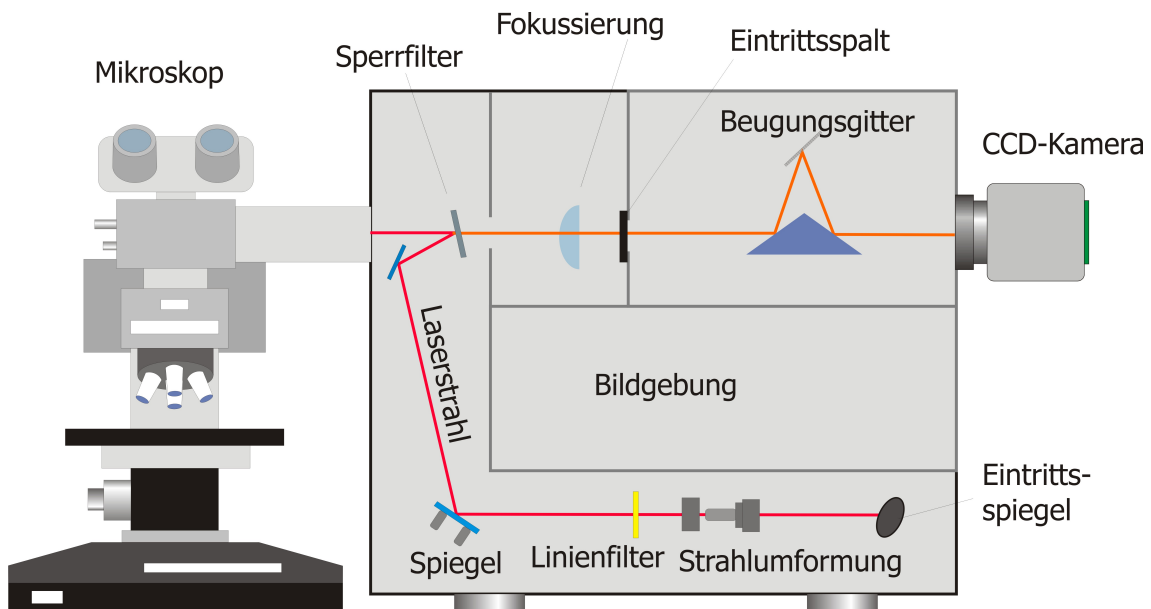


Abbildung 3.9 Schematischer Aufbau des Raman-Mikroskops RENISHAW 2000

Für die Kalibrierung des Spektrometers bezüglich der Raman-Verschiebung diente die Schwingung reinen Siliziums bei 520 cm^{-1} als Referenz. Dafür wurde ein Spektrum an der (111)-Ebene eines definierten Silizium-Wafers mit 100 % Laserleistung, fokussiertem Laserstrahl, 1 s Belichtungszeit und x50-Objektiv-Vergrößerung aufgenommen. Die Spektren auf der Rußoberfläche wurden im Bereich zwischen 800 cm^{-1} und 2000 cm^{-1} (Stokes-Verschiebung) mit einem x50-Objektiv (Leica) aufgenommen. Die Belichtungszeit wurde anhand des Signal/Rauschverhältnisses optimiert. Für die Messung wurden 25 % Laserleistung, 100 % Defokussierung (40 μm Laserstrahldurchmesser) und im Regelfall fünf Aufnahmen gewählt.

Für detaillierte Auswertungen der Raman-Spektren wird eine 5-Banden-Progression nach Sadezky et al. [148] durchgeführt. Um Reaktivitäts-Struktur-Korrelationen aufzustellen, müssen die Halbwertsbreite (FWHM, Full Width at Half Maximum) der D1-Bande (gestörte graphitische Schichten) und die relative Intensität der D3-Bande (amorpher Kohlenstoff) betrachtet werden. Zudem ist auf Grund der hohen Anteile an organischen Verbindungen in den Rußproben eine Betrachtung der dafür relevanten D4-Bande nötig.

3.2.5 Neutronenradiographie

Zur Bestimmung der Dicke der bei den Ablagerungsversuchen entstehenden Schmutzschicht wurde die Neutronenradiographie eingesetzt, ein zerstörungsfrei arbeitendes Durchleuchtungsverfahren. Bei dieser Methode wird die Schwächung eines Neutronenstrahls, mit dem die zu untersuchende Probe beschossen wird, gemessen. Entscheidend dabei ist die Tatsache, dass leichtere Elemente wie Wasser- oder Kohlenstoff die Neutronen stärker abschwächen als schwerere Elemente wie Aluminium, welches die Neutronen fast ungehindert passieren [149, 150]. Diese Eigenschaft erlaubt es, die Dicke der im Wärmetauscherrohr abgelagerten Rußschicht, die vermehrt Kohlenwasserstoffe enthält, zu ermitteln [151, 152, 153].

Die Messungen wurden an der Neutronenquelle des Forschungsreaktors München 2, am Instrument ANTARES durchgeführt. Der Aufbau der Anlage ist detailliert in [154] beschrieben, die wichtigsten Eigenschaften fasst Tabelle 3.1 zusammen.

Tabelle 3.1 Eigenschaften ANTARES [155]

Spektrum am SR4	Kalte Neutronen
L/D-Verhältnis	400 bis 14000
Neutronenfluss	108 Neutronen $\cdot ss^{-1} \cdot cm^{-2}$ für L/D = 400
Strahldurchmesser am Probenort	40 cm x 40 cm
Detektor	CCD (2048 x 2048) Image Plates (bis 12,5 μm min. Pixelgröße)

Abbildung 3.10 zeigt eine schematische Darstellung der Anlage und des Messprinzips: Mit Hilfe einer aus Gadoliniumoxysulfid bestehenden und mit Terbium dotierten ($Gd_2O_2S:Tb$) Szintillatorplatte, die beim Auftreffen von Neutronen Photonen abgibt, sowie einer CCD-Kamera lässt sich die Schwächung des Neutronenstrahls sichtbar machen. Dabei registriert der Detektor ein zweidimensionales Bild des untersuchten Kühlerrohres, welches seiner Projektion in die Detektorebene entspricht.

Bei der Messung werden zweidimensionale Bilder der verschmutzten Wärmetauscherrohre gewonnen. Mit Hilfe des exponentiellen Schwächungsgesetzes kann in diesen Bildern die Schwächung der Neutronen durch das Aluminium korrigiert werden. Für das durchstrahlte Rohr gelten die folgenden Gesetzmäßigkeiten.

Die Neutronentransmission ist definiert als das Verhältnis der Strahlungsintensität nach der Probe zur Strahlungsintensität vor der Probe:

$$T = \frac{I}{I_0} \quad (3.5)$$

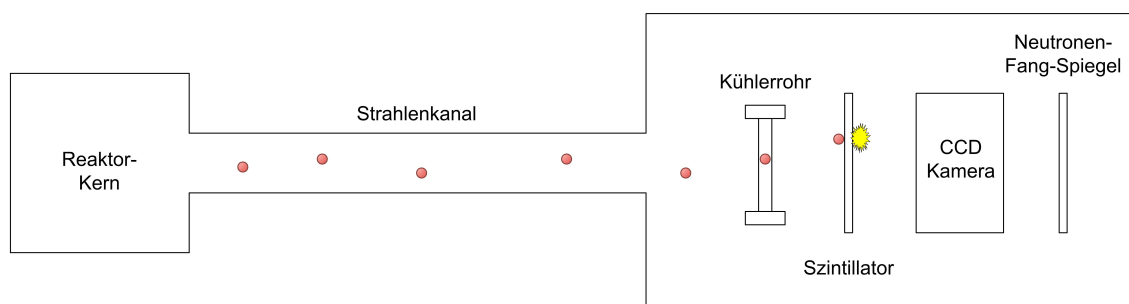


Abbildung 3.10 Aufbau und Messprinzip von ANTARES

3 Experimenteller Teil

Die Schwächung ist von exponentieller Natur und kann beschrieben werden als:

$$T = \exp(-\mu_{Alu} \cdot d_{Alu}(x)) \cdot \exp(-\mu_R \cdot d_R(x)) \quad (3.6)$$

mit μ_{Alu} und μ_R : Schwächungskoeffizient sowie $d_{Alu}(x)$ und $d_R(x)$: durchstrahlte Dicke jeweils für Aluminium bzw. Ruß. Einsetzen von Gleichung 3.6 in Gleichung 3.5 liefert:

$$I(x) = I_0 \cdot \exp(-\mu_{Alu} \cdot d_{Alu}(x)) \cdot \exp(-\mu_R \cdot d_R(x)) \quad (3.7)$$

Da ein verschmutztes Wärmetauscherrohr einen kreisförmigen Querschnitt besitzt, der sich aus dem Aluminiummantel und der Ablagerungsschicht zusammensetzt (vgl. Abbildung 3.11), müssen $d_R(x)$ und $d_{Alu}(x)$ abschnittsweise definiert werden. Tabelle 3.2 liefert eine Übersicht über die verschiedenen Definitionen.

Mit Hilfe dieser Definitionen und einer Fit-Prozedur kann dann die Dicke der Rußschicht an einem Punkt des Rohres ermittelt werden. Die für das Fitten verwendeten Parameter sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst. Der Fit wird an neun verschiedenen Positionen über die Gesamtrohrlänge durchgeführt. Aus den so gewonnenen Schichtdicken wird dann der Schichtdickenverlauf rekonstruiert.

Tabelle 3.2 Abschnittsweise Definitionen der durchstrahlten Schichtdicken

	$d_R(x)$	$d_{Alu}(x)$
$0 < x < (r_i - d)$	$2 \left(\sqrt{r_i^2 - x^2} - \sqrt{(r_i - d)^2 - x^2} \right)$	$2 \left(\sqrt{r_a^2 - x^2} - \sqrt{r_i^2 - x^2} \right)$
$(r_i - d) < x < r_i$	$2\sqrt{(r_i - d)^2 - x^2}$	$2 \left(\sqrt{r_a^2 - x^2} - \sqrt{r_i^2 - x^2} \right)$
$r_i < x < r_a$	0	$2\sqrt{(r_a - d)^2 - x^2}$
$r_a < x < \infty$	0	0

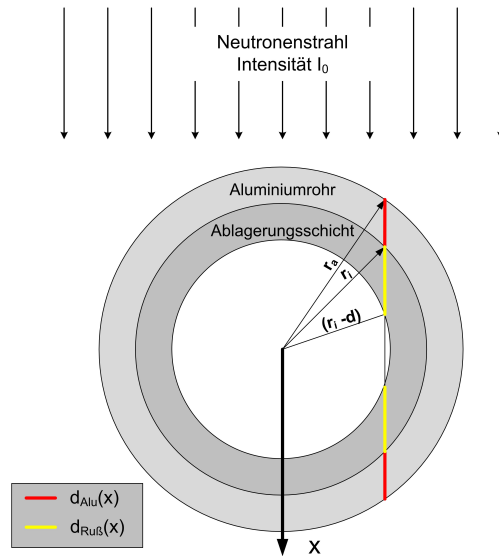


Abbildung 3.11 Erläuterung zur abschnittswiseen Definition der durchstrahlten Schichtdicken

Tabelle 3.3 Übersicht Fitparameter

Rohrinnendurchmesser	Konstant, gegeben	$r_i = 5 \text{ mm}$
Rohraußendurchmesser	Konstant, gegeben	$r_a = 6 \text{ mm}$
Verschiebung	Variabel, Startwert gesetzt	$s = 8 \text{ mm}$
Schichtdicke	Variabel, Startwert gesetzt	$d = 0,2 \text{ mm}$
Schwächungskoeffizient	Konstant, ermittelt	$\mu = 0,09 \text{ mm}^{-1}$

3.3 Bestimmung Kondensatmassenstrom

Zur Bestimmung des Massenstroms an auskondensierendem Wasser im Kühler wird abwechselnd vor und nach dem Kühler ein mit Silica-Gel gefülltes Glasrohr montiert (vgl. Abbildung 3.12). Durch das Trockenmittel wird dann ein definierter Teilstrom des Modellabgases entnommen. Das Modellabgas setzt sich bei diesen Messungen aus trockener Druckluft und Wasserdampf zusammen. Durch Bestimmung der in der Zeit t im Glasrohr gesammelten Wassermasse m_{H_2O} kann der Wassergehalt x_{g,H_2O} des entnommenen Luftstroms $\dot{m}_{Entnahme}$ vor und nach dem Kühler bestimmt und daraus der Kondensatmassenstrom ermittelt werden. Es gilt:

$$x_{g,H_2O} = \frac{m_{H_2O}}{t \cdot \dot{m}_{Entnahme}} \quad (3.8)$$

Da die Wassermasse, die eingespritzt und verdampft wird ($\dot{m}_{H_2O,ein}$), bekannt ist, kann mit Hilfe des Gasmassenstroms \dot{m}_{ges} der theoretische Wassergehalt $x_{g,H_2O,theo}$ im Abgas bestimmt werden:

$$x_{g,H_2O,theo} = \frac{\dot{m}_{H_2O,ein}}{\dot{m}_{ges}} = \frac{\dot{m}_{H_2O,ein}}{\dot{m}_G + \dot{m}_{H_2O,ein}} \quad (3.9)$$

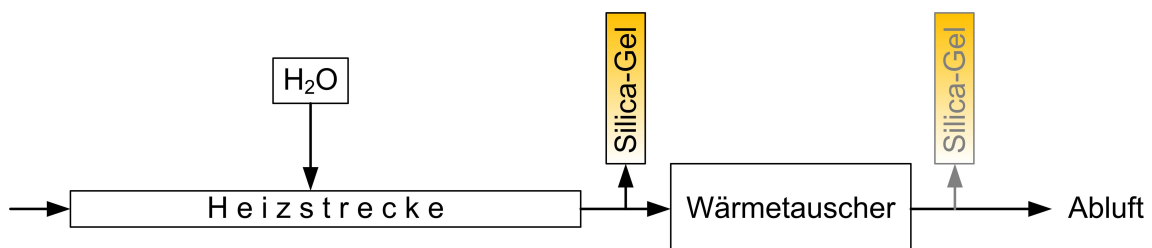


Abbildung 3.12 Schema für die Bestimmung des Kondensatmassenstroms

Um den vor dem Kühler bestimmten Wassergehalt mit dem theoretischen Wassergehalt zu vergleichen, wurde die Wiederfindung bestimmt als:

$$\text{Wiederfindung} = \frac{x_{g,H_2O}}{x_{g,H_2O,theo}} \quad (3.10)$$

Aus den ermittelten Wassergehalten vor und nach dem Kühler wird schließlich der Kondensatmassenstrom berechnet.

Für diese Messungen werden als gleichbleibende Bedingungen gewählt: $T_G = 300^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$. Jede Messung wird drei Mal wiederholt.

3.4 Ablagerungsexperimente

Mit dem Modellkühler wurde eine umfangreiche Versuchsreihe mit verschiedenen Parametern durchgeführt. Die Betriebsbedingungen sind in Tabelle 3.4 zusammengefasst. Alle Versuche wurden mit einem im Gegenstrom geführten Kühlwasserstrom von 4 L min^{-1} , einem Gasmassenstrom von $\dot{m}_G = 5,5 \text{ kg h}^{-1}$ sowie einem Systemdruck von 1 bar durchgeführt.

Für die Messungen wurde sowohl GfG-Ruß ($\dot{m}_{GfG} = 7 \text{ mg h}^{-1}$) als auch Flammruß ($\dot{m}_{Flamme} = 45 \text{ mg h}^{-1}$) verwendet. Da die eingetragene Rußpartikelmasse bekannt ist, kann durch gravimetrische Bestimmung der in der Versuchszeit t abgelagerten Masse (bestimmt durch Wiegen der sauberen sowie der verschmutzten Kühlerrohre) die auf die Masse bezogene Abscheideeffizienz des Kühlers bestimmt werden:

$$\epsilon_m = \frac{m_{\text{Ablagerung}}}{t \cdot \dot{m}_{\text{Ruß,ein}}} \quad (3.11)$$

Neben der Aerosolzusammensetzung und der Gas- sowie Kühlwassertemperaturen wurde als weiterer Parameter die Versuchslaufzeit variiert. Betrachtet wurden Laufzeiten von einer, drei, vier sowie acht Stunden.

Tabelle 3.4 Übersicht Betriebsbedingungen ($\dot{m}_G = 5,5 \text{ kg h}^{-1}$; $\dot{V}_{KW} = 4 \text{ L min}^{-1}$, Gegenstrom, $p = 1 \text{ bar}$)

Betriebspunkt	T_{ein} (°C)	T_{KW} (°C)	T_{aus} (°C)	$T_{\text{ein}} - T_{\text{aus}}$ (°C)	c_{HC} (ppm)	$c_{\text{H}_2\text{O}}$ (%)	$c_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ (ppm)	Re
A	300	20	240	60	0	0	0	>7.000
B	150	20	110	40	430	2	0,2	>5.600
C	150	80	130	20	430	2	0,2	>5.600
D	150	20	110	40	1200	5	0,5	>5.600
E	150	20	110	40	430	2	10	>5.600
F	400	20	320	80	230	0	0	>7.900
G	400	20	320	80	430	0	0	>7.900
H	400	20	330	70	0	2	0	>7.900
I	400	20	290	110	0	5	0	>7.900
J	400	20	310	90	430	2	0	>7.900
K	400	20	320	80	430	2	10	>7.900

3.5 Bestimmung der partikelgrößenabhängigen Abscheideeffizienz

Die im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Messungen liefern nur auf die Rußmasse bezogene Abscheideeffizienzen. Um eine Aussage über die Abhängigkeit der Ablagerungsbildung von der Partikelgröße treffen zu können, wurde im Rahmen einer weiteren Messreihe die größenabhängige Abscheideeffizienz $\epsilon(d_p)$ unter Verwendung monodisperser Aerosole bestimmt.

3.5.1 Größenabhängige Abscheideeffizienz

Zur Ermittlung der Partikelabscheideeffizienz eines Wärmetauschers wird generell die Rußpartikelkonzentration vor und nach dem System bestimmt. Bei Verwendung eines nach der Partikelgröße klassierenden Verfahrens kann die partikelgrößenabhängige Abscheideeffizienz $\epsilon(d_p)$ für das untersuchte System ermittelt werden:

$$\epsilon(d_p) = \frac{c_{\text{ein}}(d_p) - c_{\text{aus}}(d_p)}{c_{\text{ein}}(d_p)} \quad (3.12)$$

Dabei repräsentieren $c_{ein}(d_p)$ die Partikelkonzentration je Größenklasse vor dem Abscheidesystem und $c_{aus}(d_p)$ diejenige im Abstrom des Systems. Generell kann die Abscheidung ultrafeiner Partikel auf mehrere simultan wirkende Mechanismen zurückgeführt werden.

Der Vergleich der Abscheideeffizienzen bei verschiedenen Bedingungen erlaubt es, Schlüsse über die Verschmutzungsneigung bei eben diesen Bedingungen zu ziehen.

Neben der Abscheideeffizienz wird parallel auch der Begriff Penetration verwendet. Die Penetration P ist dabei definiert als

$$P = \frac{\text{Zahl der Partikel, die den Wärmetauscher passieren}}{\text{Zahl der Partikel, die in den Wärmetauscher eintreten}} \quad (3.13)$$

Der Zusammenhang zur Abscheideeffizienz ϵ lässt sich über die folgende Beziehung herstellen:

$$\epsilon = 1 - P \quad (3.14)$$

3.5.2 Erzeugung monodisperser Aerosole

Zur Ermittlung der Abscheideeffizienz abhängig von der Partikelgröße werden mit dem in Kapitel 3.1.4 beschriebenen DMA aus dem polydispersen GfG-Aerosol verschiedene monodisperse Aerosole mit unterschiedlichen Teilchengrößen erzeugt. Hierfür wird das polydisperse Rußaerosol (GfG-Ruß in Argon, $\dot{V} = 5 \text{ L min}^{-1}$) dem DMA zugeführt und dort in verschiedene Größenfraktionen aufgeteilt. Die so gewonnenen monodispersen Aerosole haben eine Größe zwischen 10 nm und 200 nm. Abbildung 3.13 zeigt die verschiedenen Partikelgrößen im Vergleich zur Größenverteilung des vom Dieselmotor emittierten Rußaerosols.

Zur Quantifizierung der Anzahlkonzentration der monodispersen Aerosole kann ein Kondensationskernzähler (CNC), wie er oben beschrieben ist, verwendet werden.

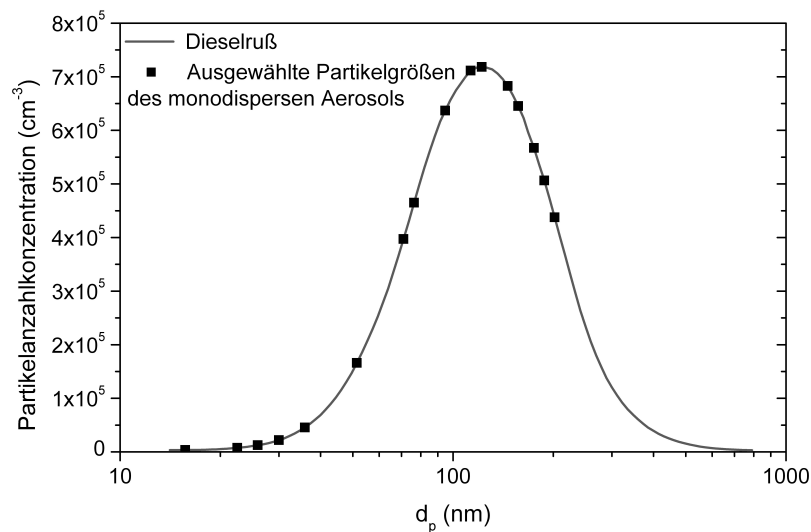


Abbildung 3.13 Typische Größenverteilung von Realruß sowie ausgewählte monodisperse Partikelgrößen

Alternativ kann auch ein Faraday-Cup-Elektrometer (FCE) eingesetzt werden, das auch als Aerosolelektrometer (AEM) bezeichnet wird.

Das FCE besteht im Wesentlichen aus einem Absolutfilter, der in einem Metallgehäuse befestigt ist und die Funktion eines Faraday'schen Käfigs übernimmt. Dieser Käfig ist sorgfältig abgeschirmt und elektrisch mit einem Elektrometerverstärker verbunden, der kleine Ströme messen kann. Gelangen geladene Partikel in den Käfig, so werden sie auf dem Filter abgeschieden. Dabei entladen sich die Partikel und verändern das Potential des Käfigs. Um die entstandene Differenz auszugleichen, wird Strom durch einen hochohmigen Widerstand zugeführt und der Stromfluss gemessen. Im Idealfall (wenn jeder Partikel nur eine Ladung trägt) ist der beobachtete Strom direkt proportional zur Partikelzahl, die pro Zeiteinheit ins Gerät eintritt. Das Messsignal des Elektrometers wird in Volt angezeigt [156]. Aus dieser Spannung kann mit Gleichung 3.15 die Partikelzahl pro Kubikzentimeter berechnet werden [157]:

$$c = \frac{U}{e_0 \cdot \dot{V}_e \cdot R} \quad (3.15)$$

Dabei ist c die Partikelzahl pro Kubikzentimeter, U die angezeigte Spannung in Volt, \dot{V}_e der Volumenstrom des Aerosols durch das Elektrometer in Milliliter pro Sekunde und R der eingebaute Widerstand in Ohm. Die Elementarladung wird durch e_0 bezeichnet. Sie beträgt $1,601 \cdot 10^{-19}$ C.

3.5.3 Versuchsbedingungen und Versuchsdurchführung

Bei den Messungen wurden die Temperatur- ($T_G = 20^\circ\text{C}$, 200°C , 300°C ; $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$, 40°C , 60°C , 80°C) und Strömungsbedingungen ($\dot{m}_G = 1 \text{ kg h}^{-1}$, 5 kg h^{-1} , 10 kg h^{-1} , 15 kg h^{-1}) im Kühler variiert. Das Aerosol setzte sich bei allen Messungen nur aus temperierter Druckluft, Argon (3 Vol-%) sowie GfG-Rußpartikeln zusammen.

Es gilt für die größte betrachtete Differenz zwischen Gas- und Kühlwassertemperatur:

$$\Delta T = T_G - T_{KW} \quad (3.16)$$

Bestimmt wurde die Abscheideeffizienz durch Messung der Partikelkonzentration vor und nach dem Kühler (vgl. Abbildung 3.14, $x = 0 \text{ mm}$ bzw. $x = 346 \text{ mm}$).

3.5.4 Ortsaufgelöste Bestimmung von Partikelkonzentration und Abscheideeffizienz

Es konnte eine Methode entwickelt werden, mit deren Hilfe die Abscheideeffizienz der Rußpartikel im Kühler bestimmt wird. Dazu wird die Partikelkonzentration vor, im und nach dem Kühler mittels Kondensationskernzähler oder Aerosolelektrometer ermittelt. Die Partikelentnahme erfolgt dabei über eine Probenahmesonde, die im Kühler zwischen den Positionen $x = 0 \text{ mm}$ und $x = 253 \text{ mm}$ frei beweglich ist. Mit ihrer Hilfe kann über die zentrale Längsachse des Kühlers die Rußkonzentration

3 Experimenteller Teil

gemessen werden. Die verwendete Sonde hat einen Innendurchmesser von 1,5 mm, ihre Länge beträgt 1 m.

Die Abscheideeffizienz der betrachteten Partikel berechnet sich mit Hilfe der folgenden Gleichung zu:

$$\epsilon(d_p) = \frac{c_{ein}(d_p) - c_x(d_p)}{c_{ein}(d_p)} \quad (3.17)$$

mit d_p Partikelgröße, c_{ein} Partikelkonzentration vor dem Kühler und c_x Partikelkonzentration an Messposition x . Die Partikelkonzentration c_{ein} wird als Referenz verwendet. Abbildung 3.14 zeigt schematisch die Anordnung der Messsonde und gibt eine Übersicht über die verschiedenen betrachteten Messpositionen x (nicht maßstabsgetreu).

Die Messsonde wurde für fast alle Messungen im Zentrum der Strömung positioniert. Für einige wenige Messungen wurde die Messsonde an die Wand angelegt, um Partikel in der Nähe der Wand entnehmen zu können.

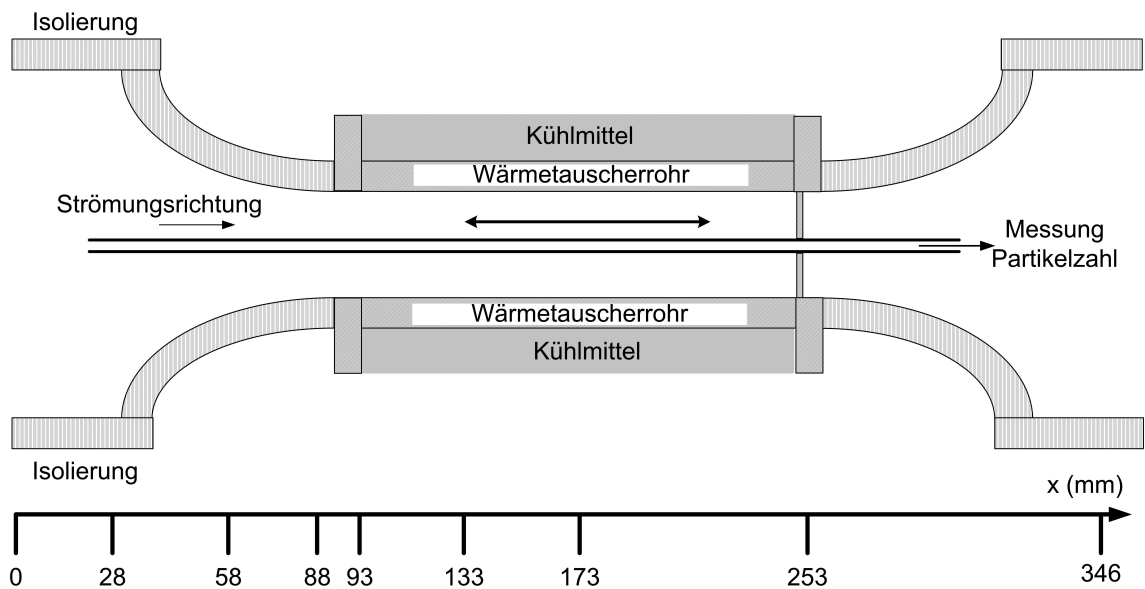


Abbildung 3.14 Schematischer Querschnitt durch den Modellwärmetauscher und Darstellung der beweglichen Probenahmesonde sowie der verschiedenen Messpunkte

4 BERECHNUNGEN

Zum Verständnis des Zusammenspiels der wirkenden Ablagerungsmechanismen im eingesetzten Modellwärmetauscher wurde rechnerisch die Abscheideeffizienz $\epsilon(d_p)$ untersucht.

4.1 Zielsetzung der Modellrechnung

Die Rechnung sollte zunächst klären, unter welchen Bedingungen im Modellkühler Kondensation auftritt. Anschließend sollte bestimmt werden, wie sich Kondensation auf die Abscheidung der Rußpartikel auswirkt, d.h. wie stark der Effekt der Diffusiophorese in diesem Fall ist. Zudem sollte der Einfluss von Diffusion und Thermophorese unter den betrachteten Bedingungen ermittelt werden. Nach Möglichkeit sollte auch eine Aussage über das genaue Zusammenwirken der betrachteten Mechanismen getroffen werden.

4.2 Grundlagen der Modellrechnung

Der betrachtete Abgaswärmetauscher stellt ein sehr komplexes System dar. Daher mussten für die Modellrechnung vereinfachende Annahmen getroffen werden, die im Folgenden zusammengefasst sind.

4.2.1 Beschreibung Abgas

Für die Modellrechnungen wurde die Kondensation eines Dampfes (Index: D) in Gegenwart eines nichtkondensierbaren Gases (Index: G), in dem Aerosol-Partikel enthalten sind, betrachtet. Dabei wird die Partikelgröße nicht durch Kondensation verändert, außerdem wirken die Partikel nicht als Kondensationskerne.

Die verwendeten Stoffdaten entsprechen denjenigen von Luft, die sich aus 78,12 % N₂, 20,96 % O₂ sowie 0,92 % Ar zusammensetzt [158]. Dabei wird angenommen, dass Stoffwerte wie Viskosität, Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität nicht abhängig vom Systemdruck sind (Änderungen der Werte sind im betrachteten Druckbereich kleiner als 2 % [158]), sondern nur von der Temperatur. Allein bei der Gasdichte wird zusätzlich die Druckabhängigkeit berücksichtigt. Zudem wird die Änderung der Stoffeigenschaften durch die Zugabe von Wasser-, Schwefelsäure- und HC-Dampf vernachlässigt, um die Rechnung einfach zu halten.

Es wird davon ausgegangen, dass die Partikel stets die gleiche Temperatur haben wie das sie umgebende Gas. Alle Partikel besitzen die gleiche Dichte sowie Wärmeleitfähigkeit. Da einzelne Partikel betrachtet werden sollen, spielt die Partikelanzahlkonzentration keine Rolle. Außerdem finden keine chemischen Reaktionen statt.

4.2.2 Beschreibung Temperaturprofil

Um die oben beschriebenen Ziele erreichen zu können, muss das Temperaturprofil im Modellkühler bekannt sein. Dazu wurde zunächst ein lineares Temperaturprofil in Rohrlängsrichtung (x-Richtung, Definition siehe Abbildung 4.1) angenommen. In radialer Richtung (y-Richtung) wurde die kühlende Wirkung des Wärmetauschers vernachlässigt. Daraus ergeben sich in dieser Richtung konstante Gas- und Wandtemperaturen. So konnten diejenigen Bedingungen herausgearbeitet werden, die für die Versottung des Kühlers am förderlichsten sind und daher im Kühlerbetrieb vermieden werden sollten.

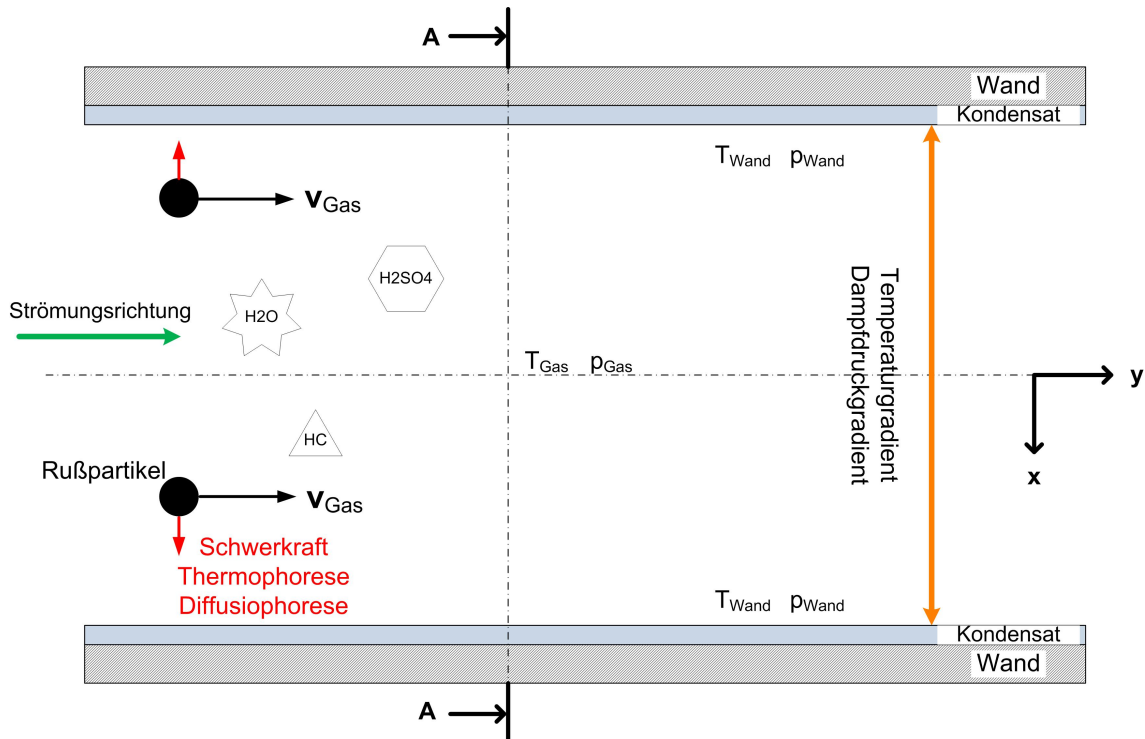


Abbildung 4.1 Definition des Koordinatensystems und Beschreibung des betrachteten Systems

Die Werte für die Gas- und Wandtemperaturen sind dabei so gewählt, dass realistische Bedingungen abgebildet werden. Allerdings ist die Gastemperatur auf 350°C limitiert, da für höhere Temperaturen keine Stoffdaten für die Schwefelsäure zur Verfügung stehen.

Aus dem Temperaturprofil lässt sich der Dampfdruckgradient ∇p_D im betrachteten System bestimmen, es gilt:

$$\nabla p_D = \frac{dp_D}{dx} = \frac{dp_D}{dT} \cdot \frac{dT}{dx} \quad (4.1)$$

4.2.3 Beschreibung Strömungszustand

Es wird davon ausgegangen, dass das heiße Gas, welches das Abgas darstellt, gleichförmig durch das Rohr in y -Richtung strömt (Pfropfenströmung), unabhängig von den gewählten Gasmassenströmen. Diffusion von Rußpartikeln und Dampfkomponenten findet nur in x -Richtung statt, es tritt keine Diffusion in Strömungsrichtung und auch keine Rückvermischung auf.

Die anfängliche Geschwindigkeit, mit der die Partikel den Kühler betreten, ist gleich der Gasgeschwindigkeit, der Vektor zeigt in die gleiche Richtung. Alle Partikel bewegen sich bei Eintritt in den Kühler entlang einer Achse parallel zur Rohrwand, allerdings können sich die Partikel in unterschiedlichen Abständen H zur Kühlerwand befinden. Sobald ein Ablagerungsmechanismus wirkt, wird der Partikel aus seiner Flugbahn abgelenkt, da eine Geschwindigkeitskomponente in radialer Richtung dazukommt.

4.2.4 Weitere Annahmen

Alle betrachteten Kräfte wirken senkrecht zur y -Achse des Systems, wobei Sedimentation, elektrostatische Kräfte und Brown'sche Diffusion vernachlässigt werden. Thermophorese und Diffusiophorese werden unabhängig voneinander betrachtet. Es wird nur der vom Kühlmittel umströmte Bereich des Kühlers betrachtet. Abbildung 4.1 zeigt schematisch die im Kühler gegebenen Voraussetzungen.

Theoretisch sollten die Kräfte, die in einem Rohr mit rundem Querschnitt wirken, keine Auswirkungen auf ein Partikel, das sich exakt im Zentrum des Rohres befindet haben, da sie unter den gegebenen Umständen in alle Richtungen gleich wirken. Betritt der Partikel jedoch exzentrisch den Kühler, so können z.B. thermophoretische oder diffusiophoretische Kraft in eine bestimmte Richtung stärker auf den Partikel wirken und ihn in Richtung der ihm am nächsten gelegenen Wand bewegen. Da dieser Einfluss in radialer Richtung für Thermophorese und Diffusiophorese überall gleich ist und die Schwerkraft vernachlässigt wird, kann die betrachtete Geometrie durch

den Übergang zu einem linearen System mit gerader Wand noch stark vereinfacht werden (vgl. Abbildung 4.2).

Ein Partikel, der die Wand erreicht, gilt als abgeschieden. Eine Wiederablösung der Partikel wird in der vorliegenden Arbeit nicht betrachtet.

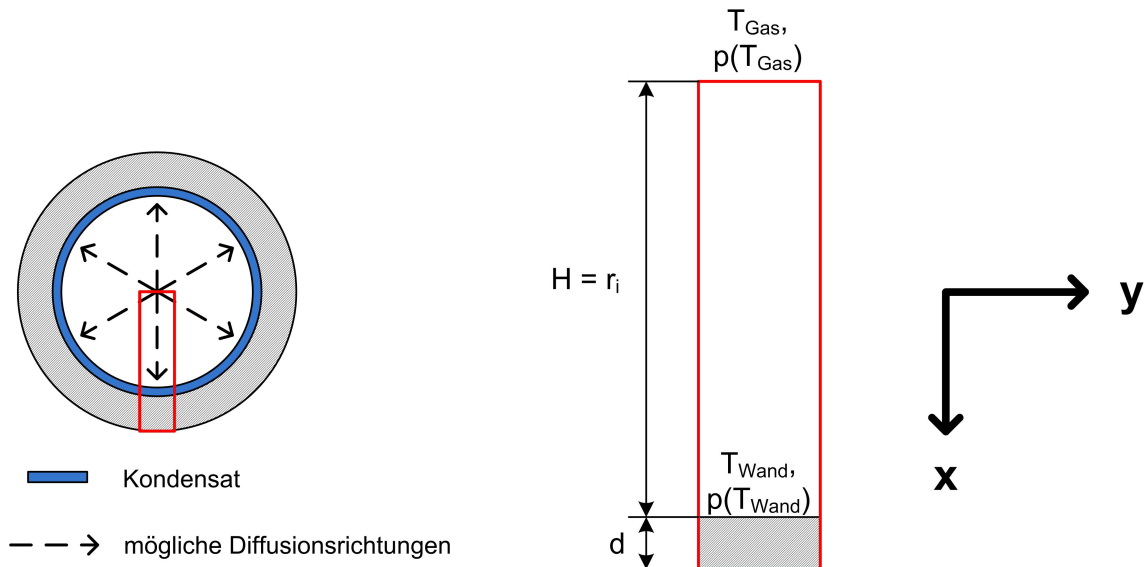


Abbildung 4.2 Übergang Rohrquerschnitt - gerade Wand

4.3 Thermophorese

Bei der Bestimmung thermophoretischer Abscheideeffizienzen werden in der Regel Partikel unter idealisierten Bedingungen (z.B. trockene Luft als Trägergas) in einem Modellwärmetauscher betrachtet. Diese idealen Bedingungen werden nicht im dieselmotorischen Abgas vorgefunden. Aus diesem Grund kann das Übertragen der aus der Literatur bekannten Ansätze auf die Abscheidung unter Realgasbedingungen nur als Abschätzung angesehen werden. Im Folgenden werden unterschiedliche Ausdrücke der thermophoretischen Abscheidung vorgestellt, die im Modell eingesetzt werden.

4.3.1 Thermophorese in einem laminar durchströmten Rohr

Nach Lin und Tsai [159] gilt für die thermophoretische Abscheideeffizienz in einem laminar durchströmten Rohr:

$$\epsilon (\%) = 78,3 \cdot \left(Pr K_{th} \frac{T_G - T_W}{T_W} \right)^{0,94} \quad (4.2)$$

Entscheidend in diesem Fall ist die Differenz zwischen Gas- und Wandtemperatur. Die Rohrgeometrie hat hier keinen Einfluss auf die Abscheideeffizienz.

Auch der Ansatz von Stratmann et al. [160] zeigt keine Abhängigkeit von der Rohrgeometrie:

$$\epsilon_\infty = 1 - \exp \left(-0,845 \left(\frac{Pr K_{th} + 0,025}{\frac{T_W}{T_G - T_W} + 0,028} \right)^{0,932} \right) \quad (4.3)$$

4.3.2 Thermophorese im durchströmten rechteckförmigen Kanal

Für den einfachen Fall eines konstanten Temperaturgradienten entlang eines durchströmten, rechteckförmigen Kanals kann die thermophoretische Abscheideeffizienz ϵ_{th} angenähert werden mit [121]:

$$\epsilon_{th} = K_{th} \frac{L \cdot \eta_{G,0} \cdot \Delta T_{log}}{\rho_{G,0} \cdot v_{x,0} \cdot H^2 \cdot \bar{T}} \quad (4.4)$$

wobei H und ΔT_{log} für den Abstand beziehungsweise die mittlere logarithmische Temperaturdifferenz zwischen kalter und heißer Oberfläche stehen:

$$\Delta T_{log} = \frac{(T_{h,ein} - T_{c,aus}) - (T_{h,aus} - T_{c,ein})}{\ln \frac{T_{h,ein} - T_{c,aus}}{T_{h,aus} - T_{c,ein}}} \quad (4.5)$$

$\eta_{G,0}$, $\rho_{G,0}$ und $v_{x,0}$ beschreiben die Eigenschaften des Gases (dynamische Viskosität, Dichte und axiale Geschwindigkeit) bei der mittleren Temperatur \bar{T} im Kühler:

$$\bar{T} = 0,5 \cdot (T_{ein} + T_{aus}) \quad (4.6)$$

Die Abscheideeffizienz nimmt nach Gleichung 4.4 mit zunehmenden Abstand H stark ab. Messerer konnte dies auch experimentell bestätigen [25]. Um diesen Fall auf das verwendete Wärmetauscherrohr mit rundem Querschnitt übertragen zu können, wird für die Berechnung der halbe innere Rohrdurchmesser r_i als maximaler Wert für H angenommen.

4.3.3 Thermophorese in einem turbulent durchströmten Rohr

Für die thermophoretische Abscheideeffizienz in einem turbulent durchströmten Rohr werden in der Literatur verschiedene Berechnungsansätze vorgestellt. Einige dieser Ansätze wurden herausgegriffen und die thermophoretische Abscheideeffizienz bzw. Penetration für den Modellkühler und ausgewählte angenommene Bedingungen berechnet.

Batchelor und Shen [161] entwickelten einen Ausdruck, um die thermophoretische Abscheidung bei laminarer Strömung zu beschreiben. Der wie folgt lautende Ansatz gilt für den Fall $\frac{L}{d_i} \rightarrow \infty$ jedoch auch für turbulente Strömung:

$$\epsilon_\infty = Pr \cdot K_{th} \left(\frac{T_G - T_W}{T_G} \right) \left(1 + (1 - Pr \cdot K_{th}) \left(\frac{T_G - T_W}{T_G} \right) \right) \quad (4.7)$$

Nach Romay et al. [103] gilt:

$$\epsilon_t h = 1 - \left[\frac{T_W + (T_G - T_W) \cdot \exp\left(-\frac{\pi d_i \alpha L}{\rho_G \dot{V}_G c_p}\right)}{T_G} \right]^{Pr \cdot K_{th}} \quad (4.8)$$

mit der Wandtemperatur T_W , der Gaseintrittstemperatur T_G , der Rohrlänge L , dem konvektiven Wärmeübergangskoeffizienten α , der Gasdichte ρ_G , dem Volumenstrom \dot{V}_G , der Wärmekapazität c_p , der Prandtl-Zahl Pr sowie dem thermophoretischen Koeffizienten K_{th} .

Nach Byers et al. [162] gilt:

$$\epsilon_{th} = 1 - \exp\left(-\frac{\rho_G c_p f Re}{4d_i \lambda_G} \cdot \frac{K_{th} \nu_G (T_G - T_W)}{\bar{T}} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{4\alpha L}{v_m \rho_G c_p d_i}\right)\right)\right) \quad (4.9)$$

mit dem Reibungsbeiwert f , der Wärmeleitfähigkeit des Gases λ_G , der kinematischen Viskosität ν_G und der mittleren Gasgeschwindigkeit v_m .

Nach Nishio et al. [163] gilt:

$$\epsilon_{th} = 1 - \exp\left(-\frac{\rho_G c_p K_{th} \nu (T_G - T_W)}{\lambda_G \bar{T}} \left(1 - \exp\left(-\frac{4\alpha L}{v_m \rho_G c_p d_i}\right)\right)\right) \quad (4.10)$$

Die Gleichungen 4.8, 4.9 und 4.10 gelten für ein Rohr mit definierter Länge L . Für den Reibungsbeiwert f gilt nach Petukhov [164]:

$$f = (0,79 \cdot \ln(Re) - 1,64)^{-2} \quad (4.11)$$

Für die Berechnung des konvektiven Wärmeübergangskoeffizienten α wurde die Nusselt-Korrelation nach Gnielinski verwendet [164]:

$$Nu = \frac{\frac{f}{8}(Re - 1000)Pr}{1 + 12,7\sqrt{\frac{f}{8}}(Pr^{(2/3)} - 1)} \quad (4.12)$$

Zudem gilt:

$$\alpha = \frac{\lambda \cdot Nu}{d_i} \left[\frac{W}{m^2 K} \right] \quad (4.13)$$

4.3.4 Thermophoretische Geschwindigkeit

Die thermophoretische Geschwindigkeit v_{th} wird mit Hilfe des thermophoretischen Koeffizienten K_{th} nach der Gleichung von Talbot bestimmt [119, 120, 121]:

$$v_{th} = -K_{th} \frac{\eta_G \cdot \nabla T}{\rho_G \cdot T_p} \quad (4.14)$$

Für die zu untersuchende Problematik der Thermophorese von Dieselrußpartikeln mit Durchmessern zwischen 10 nm und 500 nm wird oft ein konstanter thermophoretischer Koeffizient von $K_{th} = 0,55$ angenommen [121, 165, 166].

Für $Kn \approx 1$ oder $Kn \ll 1$ ist K_{th} jedoch abhängig von der Partikelgröße [162]. Nach Talbot [119] kann K_{th} dann vereinfachend unter der Annahme einer idealen Kugel als Funktion der Knudsen-Zahl Kn , d.h. der mittleren freien Weglänge des Gases λ sowie des Partikeldurchmessers d_p berechnet werden [67]:

$$K_{th} = 2 \cdot c_s \cdot C_S \frac{k^* + c_t \cdot Kn}{(1 + 3 \cdot c_m \cdot Kn) \cdot (1 + 2 \cdot k^* + 2 \cdot c_t \cdot Kn)} \quad (4.15)$$

mit C_S Cunningham-Slip-Korrekturfaktor, $k^* = \frac{k_G}{k_P} := 1$ Verhältnis der thermischen Leitfähigkeiten von Gas und Partikel, $c_m = 1,146$, $c_s = 1,147$ und $c_t = 2,18$ (nach Batchelor und Shen [161]).

4.3.5 Isotherme Abscheideeffizienz

Durch Experimente lässt sich die totale Abscheideeffizienz $\epsilon(d_p)$ bestimmen (vgl. Gleichung 3.12). Diese kann aufgeteilt werden in einen isothermen Anteil ϵ_{iso} und einen thermophoretischen Anteil ϵ_{th} :

$$\epsilon(d_p) = \epsilon_{iso} + \epsilon_{th} \quad (4.16)$$

Der isotherme Anteil ϵ_{iso} besteht aus Partikeln, die durch Diffusion, Impaktion und Interzeption abgeschieden werden. ϵ_{iso} kann bestimmt werden, indem der Wärmetauscher isotherm unter sonst unveränderten Bedingungen betrieben wird. In bisher untersuchten Abscheiderstrukturen liegt die isotherme Abscheideeffizienz zwischen 2 % und 20 % [25].

4.4 Diffusiophorese

Für die Berechnungen zur Diffusiophorese wird vereinfachend davon ausgegangen, dass das Abgas sich nur aus einer nichtkondensierbaren Komponente (Aerosol) und einer kondensierenden Komponente (Dampf) zusammensetzt. Ähnliche Systeme sind z.B. bei Whitmore und Meisen [167] oder Chernyak et al. [168] beschrieben.

4.4.1 Diffusionskoeffizient

Durch die Kondensation der Dampfkomponekte wird im Kühler ein Transport der im Abgas enthaltenen Rußpartikel zur Kühlerwand induziert. Um diesen Prozess beschreiben zu können, muss zunächst der Diffusionskoeffizient der kondensierenden Komponente im Trägergas bekannt sein.

Für den Diffusionskoeffizient eines Dampfes (1) in einem Gas (2) gilt nach Hirschfelder [169]:

$$D_{12} = 0,002628 \cdot \frac{\sqrt{T^3(M_1 + M_2)/2M_1M_2}}{p\sigma_{12}^2\Omega_{12}(T_{12}^*)} \quad (4.17)$$

$$\sigma_{12} = \frac{1}{2}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (4.18)$$

$$\frac{\epsilon_{12}}{k_B} = \sqrt{\frac{\epsilon_1}{k_B} \frac{\epsilon_2}{k_B}} \quad (4.19)$$

$$T_{12}^* = \frac{k_B \cdot T}{\epsilon_{12}} \quad (4.20)$$

mit T Gastemperatur (K), M_1, M_2 molare Masse der beiden Komponenten (g mol^{-1}), p Druck (atm, $1 \text{ atm} = 1,01325 \cdot 10^5 \text{ Nm}^{-2}$), k_B Boltzmannkonstante, σ_{12} und $\frac{\epsilon_1}{k_B}$ stoffspezifische Konstanten nach Hirschfelder (tabelliert, siehe Tabelle 4.1), $\Omega_{12}(T_{12}^*)$ Lennard–Jones–Potenzial für die dimensionslose reduzierte Temperatur T_{12}^* (tabelliert, siehe [169]).

Für die Berechnung der stoffspezifischen Konstanten für andere diffundierende Komponenten können auch die folgenden Gleichungen verwendet werden [170]:

$$\frac{\epsilon_{12}}{k_B} = 0,75 \cdot T_C \quad (4.21)$$

Tabelle 4.1 Stoffspezifische Konstanten (aus [169])

Gas	$\frac{\epsilon_{12}}{k_B}$ (K)	σ_{12} (Å)
Luft	84,0	3,689
N ₂	79,8	3,749
O ₂	88,0	3,541
CO ₂	213	3,897
H ₂ O	380	2,65
n-C ₉ H ₂₀	240	8,448

$$\frac{\epsilon_{12}}{k_B} = 1,39 \cdot T_b \quad (4.22)$$

$$\sigma_{12} = 8,33 \cdot 10^7 \cdot V_C^{1/3} \quad (4.23)$$

mit T_C kritische Temperatur, T_b Siedetemperatur bzw. V_C kritisches Volumen (cm^3) des entsprechenden Stoffes sowie σ_{12} Kollisionsquerschnitt der beteiligten Spezies.

Diffusionskoeffizient Schwefelsäure

Mit oben beschriebenen Gleichungen lässt sich auch der Diffusionskoeffizient von Schwefeläure in Luft abschätzen. Bei Verwendung von Gleichung 4.21 bis 4.23 ergibt sich bei einer Temperatur von 23°C für $D_{H_2SO_4, Luft}$ ein Wert von $0,097 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$.

Die in der Literatur angegebenen Werte sind damit vergleichbar. So beträgt der von Roedel [171] bei 23°C abgeschätzte Wert $D_{H_2SO_4, Luft} \approx 0,08 \pm 0,02 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Pöschl et al. [172] bestimmten einen druckunabhängigen Diffusionskoeffizient und erhielten einen Wert von $D_{H_2SO_4, Luft} = 0,088 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Bei Marti et al [173] liegt der Wert bei einer Temperatur von 30°C und einer relativen Luftfeuchte von 5% bei $D_{H_2SO_4, Luft} = 0,091 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$.

4.4.2 Diffusiophoretische Geschwindigkeit

Für die Berechnung der diffusiophoretischen Geschwindigkeit (Geschwindigkeit, die ein Partikel annimmt, wenn es dem Einfluss der Diffusiophorese unterliegt) wurden zwei verschiedene Ansätze betrachtet.

Berechnung mittels Kondensatmassenstrom

Die entscheidende Größe zur Berechnung der diffusiophoretischen Geschwindigkeit ist beim ersten Ansatz der Massenstrom des sich bildenden Kondensats. Es gilt nach [174]:

$$v_{DP} = \frac{1}{x_D \cdot \sqrt{M_D} + x_G \cdot \sqrt{M_G}} \cdot \left(\frac{R \cdot T_G}{\sqrt{M_D}} \cdot \frac{\dot{m}_{Kondensat}}{A_{Rohr,i} \cdot p_{ges}} \right) \quad (4.24)$$

mit x_D und x_G Molanteil von Dampf bzw. Inertgas, M_D und M_G molare Masse von Dampf bzw. Inertgas, p_{ges} Systemdruck, R allgemeine Gaskonstante, T_G Gas-temperatur, $A_{Rohr,i}$ Innenfläche des betrachteten Wärmetauscherrohres sowie dem Kondensat-Massenstrom $\dot{m}_{Kondensat}$. Dieser kann durch Aufstellen einer Massenbilanz berechnet werden [175]. Es gilt:

$$\dot{m}_{Kondensat} = q_D \cdot A_{Rohr,i} \quad (4.25)$$

mit der Massenstromdichte an auskondensierendem Dampf q_D :

$$q_D = Sh \cdot D_{12} \cdot \frac{c_{D,Bulk} - c_{D,W}}{d_i} \quad (4.26)$$

mit Sh Sherwoodzahl, D_{12} Diffusionskoeffizient, $c_{D,Bulk}$ Dampfkonzentration im Kern der Strömung, $c_{D,W}$ Dampfkonzentration über der Wand sowie d_i Rohrrinnendurchmesser. Die für die Auswertung von Gleichung 4.26 benötigten Größen werden nachfolgend vorgestellt.

Die Sherwoodzahl berechnet sich (nach Dittus-Boelter) [106] zu:

$$Sh = 0,023 \cdot Re^{0,8} \cdot Sc^{0,3} \quad (4.27)$$

4 Berechnungen

Für die Reynolds- und Schmidt-Zahl gilt:

$$Re = \frac{v_G \cdot d_i \cdot \rho_G}{\eta_G} \quad (4.28)$$

$$Sc = \frac{\eta_G}{\rho_G \cdot D_{12}} \quad (4.29)$$

Dampfkonzentration im Kern der Strömung:

$$c_{D,Bulk} = \frac{x_{g,D} \cdot \dot{m}_{ges}}{\dot{V}_{ges}} \quad (4.30)$$

Dampfkonzentration über der Wand ($H \rightarrow 0$):

$$c_{D,W} = \frac{p_{sat} \cdot M_D}{R \cdot T_W} \quad (4.31)$$

Für den Sättigungsdampfdruck p_{sat} von Wasser bei der Temperatur T gilt nach Goff-Gratch [176]:

$$p_{sat} = p_{st} \cdot 10^Z \quad (4.32)$$

mit

$$Z = a \cdot \left(\frac{T_S}{T} - 1 \right) + b \cdot \log_{10} \left(\frac{T_S}{T} \right) + c \cdot \left(10^{d \left(1 - \frac{T}{T_S} \right)} - 1 \right) + f \cdot \left(10^{h \left(\frac{T}{T_S} - 1 \right)} - 1 \right) \quad (4.33)$$

mit den Konstanten aus Tabelle 4.2.

Tabelle 4.2 Konstanten für Berechnung des Sättigungsdampfdrucks

a = - 7,90298	b = 5,02808	c = - 1,3816·10 ⁻⁷
d = 11,344	f = 8,1328·10 ⁻³	h = - 3,49149
p _{st} = 1013,246 mbar	T _S = 373,16 K	

Berechnung mittels Dampfdruckgradient

Beim zweiten Ansatz beruht die Berechnung der diffusiophoretischen Geschwindigkeit auf der Betrachtung des Dampfdruckgradienten der kondensierenden Komponente. Es wurde die von Kousaka und Endo [177] beschriebene Gleichung verwendet. Bei der Rechnung wurden Wasserdampf und Schwefelsäure (H₂SO₄) berücksichtigt. Die diffusiophoretische Geschwindigkeit berechnet sich demnach zu:

$$v_{DP} = - \frac{p_{ges} \cdot \sqrt{M_D}}{p_D \cdot \sqrt{M_D} + p_G \cdot \sqrt{M_G}} \cdot \frac{D_{12}}{p_G} \cdot \frac{dp_{sat,D}}{dx} \quad (4.34)$$

Mit p_{ges} Systemdruck, M_D und M_G molare Masse von Dampf bzw. Inertgas, p_D und p_G Partialdruck von Dampf bzw. Inertgas, $\frac{dp_{sat,D}}{dx}$ Dampfdruckgradient sowie D_{12} dem Diffusionskoeffizienten des Dampfes im Gas.

Der Sättigungsdampfdruck $p_{sat,D}$ lässt sich aus der Antoine-Gleichung bestimmen:

$$\log_{10}(p_{sat,D}) = A - \frac{B}{C + T_D} \quad (4.35)$$

Die Koeffizienten A, B und C sind dabei spezifisch für jede Substanz. In Tabelle 4.3 sind diese Koeffizienten für die betrachteten Komponenten Wasser, Schwefelsäure, Dodecan und Hexadecan sowie die bei der Berechnung einzusetzenden Einheiten angegeben.

Tabelle 4.3 Koeffizienten der Antoine-Gleichung

Komponente	A	B	C
Wasser (kPa, °C)[177]	7,07406	1657,5	227,02
Schwefelsäure (atm, K) [178]	16,259 ± 0,437	10156 ± 175	0
n-Dodecan (bar, K) [179]	4,10549	1625,928	- 92,839
n-Hexadecan (bar, K) [180]	4,17312	1845,672	- 117,054

4.5 Diffusion

Die Diffusion lässt sich mit Hilfe des 1. Fick'schen Gesetzes beschreiben [35, 25]:

$$\vec{j}_{diff} = -D_p \frac{dn}{dx} \quad (4.36)$$

Der Diffusionskoeffizient D_p ist dabei ein Maß für die Geschwindigkeit, mit welcher der Partikeltransport erfolgt und lässt sich mit der Stokes–Einstein–Gleichung berechnen [35]:

$$D_p = \frac{k_B \cdot T \cdot C_C(d_p)}{3\pi \cdot \eta_G \cdot d_p} \quad (4.37)$$

mit der Boltzmannkonstante k_B , der Temperatur T , dem Cunningham-Slip-Faktor C_C , der dynamischen Viskosität η_G und dem Partikeldurchmesser d_p .

Der Cunningham-Slip-Faktor muss hier verwendet werden, da die Rußpartikel sehr klein sind. Die sonst getroffene Annahme, dass die relative Geschwindigkeit an der Partikeloberfläche vernachlässigbar klein ist, gilt für diesen Fall nicht, es tritt ein Gleiten der Gasmoleküle auf, die Widerstandskraft wird verringert [35]. Nach Friedlander [104] errechnet sich C_C wie folgt:

$$C_c(d_p) = 1 + \frac{2\lambda}{d_p} \left(1,257 + 0,4 \cdot \exp \left(-0,55 \frac{d_p}{\lambda_G} \right) \right) \quad (4.38)$$

mit der mittleren freien Weglänge der Gasmoleküle λ_G ,

$$\lambda_G = \frac{\eta_G}{0,491 \cdot \rho_G \cdot \bar{c}} \quad (4.39)$$

die sich aus der mittleren Molekulargeschwindigkeit der Gasmoleküle \bar{c} berechnen lässt

$$\bar{c} = \sqrt{\frac{8 \cdot k_B \cdot T}{\pi \cdot m_m}} \quad (4.40)$$

mit der Masse eines Einzelmoleküls m_m .

Der Brown'sche Diffusionskoeffizient von Aerosolpartikeln ist sehr klein, wesentlich kleiner als die Diffusionskoeffizienten von Gasmolekülen, da sie im Vergleich eine wesentlich höhere Masse besitzen als Gasmoleküle [161]. Gormley und Kennedy [181] geben zur Bestimmung der diffusionsbedingten Abscheidung zwei Gleichungen an. Damit kann die Penetration P im Rohr, d.h. der Anteil an Partikeln, der nicht abgeschieden wird, in Abhängigkeit von der Partikelgröße berechnet werden:

$$P = 1 - 2,56\xi^{\frac{2}{3}} + 1,2\xi + 0,177\xi^{\frac{4}{3}} \quad \text{für } \xi < 0,02 \quad (4.41)$$

$$P = 0,819\exp(-3,657\xi) + 0,097\exp(-22,3\xi) + 0,032\exp(-57\xi) \quad \text{für } \xi \geq 0,02 \quad (4.42)$$

Der Abscheideparameter ξ ist dabei definiert als:

$$\xi = \frac{\pi \cdot D_p \cdot L}{\dot{V}} \quad (4.43)$$

Die diffusionsbedingte Abscheideeffizienz ϵ_{diff} ergibt sich aus der Penetration P zu:

$$\epsilon_{\text{diff}} = (1 - P) \cdot 100\% \quad (4.44)$$

4.6 Charakteristische Zeiten

Die Verweilzeit eines Gases ist bei gegebenem durchströmten Volumen V_R und Volumenstrom \dot{V} definiert als:

$$\tau = \frac{V_R}{\dot{V}} \quad (4.45)$$

Aus der Gasgeschwindigkeit bei gegebenen Temperatur- und Druckbedingungen kann die Verweilzeit τ_G des Gases im Kühler berechnet werden:

$$\tau_G = \frac{L}{v_G} \quad (4.46)$$

Da davon ausgegangen wird, dass ein Rußpartikel, der mit dem Gasstrom den Kühler betritt, die gleiche Geschwindigkeit aufweist wie der Gasstrom selbst, kann dieser abgelagert werden, wenn die Zeit, die er für die Ablagerung braucht, kürzer ist als seine Verweilzeit im Kühler. Generell gilt: je größer die Verweilzeit τ eines Partikels in einem definierten Volumen V_R ist, desto wahrscheinlicher kommt es zu seiner Abscheidung. Die Zeit $\tau_{\text{Ablagerung}}$, die der Partikel bis zur Ablagerung benötigt, wird berechnet aus seinem Abstand zur Wand H und der Ablagerungsgeschwindigkeit, die abhängig ist vom wirkenden Mechanismus.

$$\tau_{\text{Ablagerung}} = \frac{H}{v_{\text{Ablagerung}}} \quad (4.47)$$

Aus diesen Überlegungen kann bei Annahme eines linearen Temperaturprofils und konstantem Wärmetransport eine Abscheideeffizienz E berechnet werden [121]:

$$E = \frac{|v_{\text{Ablagerung}}| \cdot L}{v_G \cdot H} = \frac{\tau_G}{\tau_{\text{Ablagerung}}} \quad (4.48)$$

Da diese Größe einen Wert größer als 1 annehmen kann, unterscheidet sich diese Abscheideeffizienz von der tatsächlichen, experimentell bestimmten (vgl. Gleichung 3.12). Wird $E > 1$, so bedeutet dies, dass ein Partikel, der den Kühler betritt, sicher durch den betrachteten Mechanismus dort abgeschieden wird. Aufgrund des Zusammenwirkens der unterschiedlichen Effekte im Kühler, z.B. zusätzlicher turbulenter Verwirbelung, können aber im Realfall auch Partikel abgeschieden werden, wenn E für den betrachteten Mechanismus kleiner 1 ist. Der Definition von E kann entnommen werden, dass die Wahrscheinlichkeit der Ablagerung mit abnehmendem Abstand H zur Wand zunimmt, da die Partikel eine kürzere Strecke zurücklegen müssen.

4.7 Parametervariation

Für die Berechnungen wurden die Gas- und Wandtemperatur, der Systemdruck, der Gasmassenstrom, der Wasser- und Schwefelsäuregehalt sowie der Abstand der Partikel zur Wand variiert. Tabelle 4.4 fasst die verschiedenen Werte zusammen.

Tabelle 4.4 Parameter für die durchgeführten Berechnungen

T_G (°C)	T_W (°C)	p (bar)	\dot{m} (kg h ⁻¹)	x_{g,H_2O} (Gew.-%)	x_{g,H_2SO_4} (ppm)	H (m)
150	20	1	1	0,5	0,01	0,00001
200	40	3	5	1	0,05	0,00005
300	60	5	10	2	0,1	0,0001
350	80	10	15	5	0,5	0,0002
	100			8	1	0,0003
	149			10	5	0,0004
					10	0,0005
					20	0,001
						0,002
						0,003
						0,004
						0,005

5 ERGEBNISSE UND DISKUSSION

5.1 Aerosolcharakterisierung

Die Größenverteilungen der am Modellprüfstand erzeugten Rußaerosole sind mit den Größenverteilungen des am Motorenprüfstand bei verschiedenen Lastpunkten entstehenden Rußes vergleichbar (vgl. Abbildung 5.1).

Bei den Motorbetriebspunkten von 1000 min^{-1} bei 1 bar effektivem Mitteldruck bzw. 1500 min^{-1} und 3 bar liegt der Median der Größenverteilung bei 50 nm. Beim Betriebspunkt 2000 min^{-1} und 5 bar verschiebt sich der Median in Richtung größerer Agglomerate mit einer Größe von 120 nm. Beim Graphitfunkenruß liegt der Median bei einer Partikelgröße von 100 nm, beim Flammruß bei 120 nm.

Der GfG erzeugt Partikel mit einer Anzahlkonzentration, die der bei niedrigen Umdrehungszahlen vom Motor emittierten entspricht. Die Anzahlkonzentration des Flammrußes liegt meist deutlich unter den vom Motor emittierten Konzentrationen. In Tabelle 5.1 sind die Partikelanzahlkonzentrationen, wie sie für die Emission des Motors sowie die Partikelerzeugung am Modellprüfstand mittels SMPS bestimmt wurden, zusammengefasst.

Tabelle 5.1 Partikelanzahlkonzentrationen

Realruß	bis zu $2,5 \cdot 10^7$ Partikel pro cm^3
GfG-Ruß	$1,8 \cdot 10^6$ Partikel pro cm^3
Flammruß	$9,3 \cdot 10^6$ Partikel pro cm^3

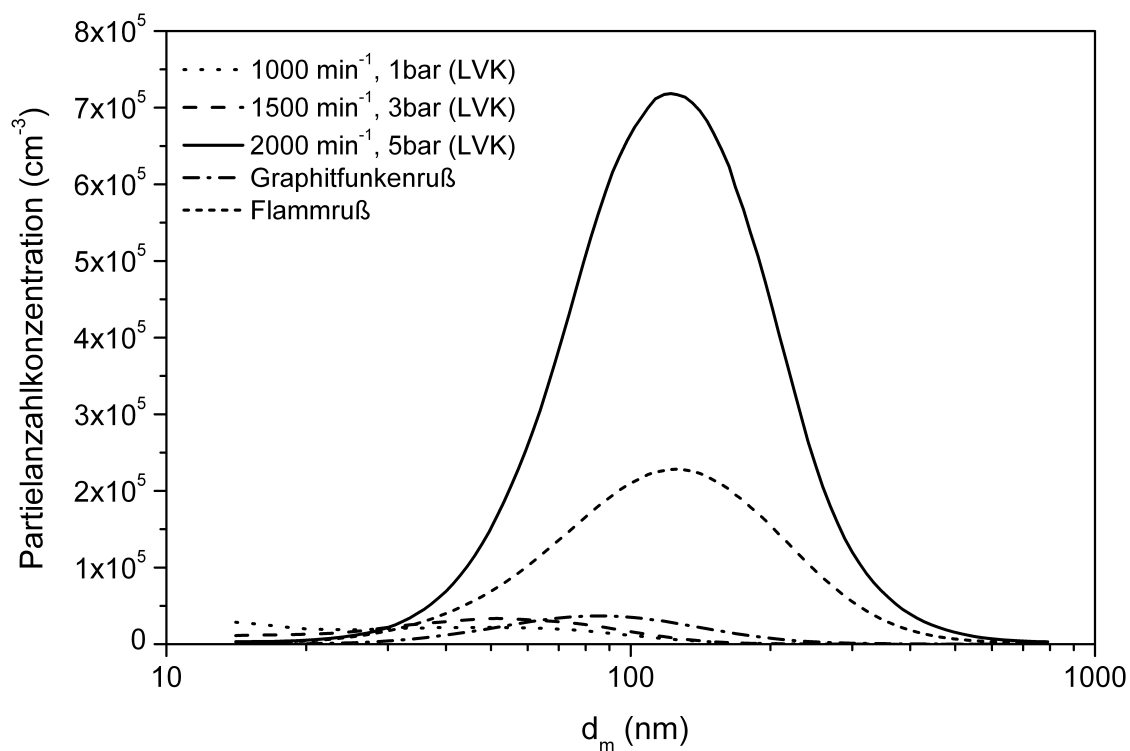


Abbildung 5.1 Typische Größenverteilungen für Realruß (verschiedene Motorbetriebspunkte), Graphitfunkenruß und Flammruß

5.2 Coulometrische Kohlenstoffbestimmung

5.2.1 Filterproben

Tabelle 5.2 fasst die Ergebnisse der coulometrischen Kohlenstoffbestimmung der auf Filtern gesammelten Rußproben zusammen. Es zeigte sich, dass die Proben vom Motorbetriebspunkt 2000 min^{-1} bei 5 bar weniger organischer Kohlenstoff im Ruß aufweisen. Ebenso wurden weniger inerte Komponenten als bei den Betriebspunkten 1000 min^{-1} bei 1 bar sowie 1500 min^{-1} bei 3 bar gefunden.

Bei beiden am Modellprüfstand erzeugten Rußarten (GfG- und Flammruß) lassen sich keine sonstigen Bestandteile, wie z.B. Metalloxide oder Sulfate finden. Der Flammruß (Propan) hat jedoch im Vergleich zu allen anderen untersuchten Proben einen erhöhten Anteil an organischem Kohlenstoff.

Tabelle 5.2 Zusammensetzung der auf Filtern gesammelten Rußproben

	Elementarer Kohlenstoff	Organischer Kohlenstoff	Sonstige Bestandteile
Realruß (1000 min ⁻¹ , 1 bar, n = 3)	55 % ± 4 %	14 % ± 8 %	31 % ± 5 %
Realruß (1500 min ⁻¹ , 3 bar, n = 5)	34 % ± 4 %	21 % ± 11 %	45 % ± 9 %
Realruß (2000 min ⁻¹ , 5 bar, n = 5)	82 % ± 8 %	7 % ± 8 %	11 % ± 2 %
Graphitfunkenruß (n = 5)	83 % ± 7 %	17 % ± 7 %	0 %
Flammruß (n = 4)	42 % ± 17 %	58 % ± 17 %	0 %

5.2.2 Ablagerungen

Aus den bei den Prüfstandsversuchen versotteten Rohren wurden Rußproben entnommen und ebenfalls auf die verschiedenen Kohlenstoffanteile untersucht. Zudem wurden Proben untersucht, die bei Ablagerungsversuchen am Motorenprüfstand des LVK erzeugt wurden. Dabei zeigte sich, dass der im Kühler abgelagerte Ruß im Vergleich zu dem aus dem Gasstrom gefilterten Ruß vermehrt HC-Komponenten enthält. Dies trifft vor allem für den Realruß zu. Außerdem bestehen die Ablagerungen aus größeren Mengen nichtkohlenstoffhaltiger Komponenten.

So enthält der beim Betriebspunkt 1000 min⁻¹, 1 bar entstehende Ruß vor allem elementaren Kohlenstoff (vgl. Tabelle 5.2). Die bei einer Kühlwassertemperatur von $T_{KW} = 80\text{ °C}$ beim gleichen Betriebspunkt entstehenden Ablagerungen dagegen enthalten überwiegend organischen Kohlenstoff (vgl. Tabelle 5.3). Aufgrund der hohen Wandtemperatur wird der Taupunkt für HC deutlich unterschritten, andere Bestandteile wie Schwefelsäure kondensieren jedoch nicht so stark aus wie bei niedrigerer Wandtemperatur. Für den Betriebspunkt 2000 min⁻¹, 5 bar gilt dies ebenfalls: Der Anteil an organischem Kohlenstoff in den Ablagerungen nimmt mit der Kühlwasser- und damit Wandtemperatur deutlich zu und liegt weit über dem Anteil der aus der Gasphase gesammelten Rußpartikel. Durch den erhöhten Druck wird der Säuretaupunkt herabgesetzt und es finden sich vermehrt nichtkohlenstoffhaltige Bestandteile.

Für den Betriebspunkt 1500 min^{-1} , 3 bar waren die Ablagerungsmengen zu gering, um Proben für die Analysen entnehmen zu können.

Der Flammruß, der auf Filtern gesammelt wurde, setzt sich ähnlich zusammen wie der ohne Zusätze im Rohr abgelagerte. Durch Zugabe von Additiven und Änderung der Temperaturbedingungen enthalten die Ablagerungen ebenfalls mehr organischen Kohlenstoff (hohe Gastemperatur) oder andere nichtkohlenstoffhaltige Bestandteile (geringere Gastemperatur), die in diesem Fall von der zugegebenen Schwefelsäure stammen (vgl. Tabelle 5.3).

Aus diesen Ergebnissen lässt sich schließen, dass die Kondensation unverbrannter HC und anderer Abgasbestandteile entscheidend für die Ablagerungsbildung ist.

Tabelle 5.3 Zusammensetzung der Rußablagerungen im Modellkühler

	Elementarer Kohlenstoff	Organischer Kohlenstoff	Sonstige Bestandteile
Realruß 1000 min^{-1} , 1 bar $T_G = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 80 \text{ }^\circ\text{C}$	24 %	60 %	16 %
Realruß 2000 min^{-1} , 5 bar $T_G = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$	32 %	39 %	29 %
Realruß 2000 min^{-1} , 5 bar $T_G = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 40 \text{ }^\circ\text{C}$	26 %	37 %	37 %
Realruß 2000 min^{-1} , 5 bar $T_G = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 80 \text{ }^\circ\text{C}$	12 %	50 %	38 %
Flammruß ohne Zusätze	56 %	34 %	10 %
Flammruß mit 2 % H_2O , 430 ppm HC, 10 ppm H_2SO_4 $T_G = 150 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$	24 %	7 %	69 %
Flammruß mit 2 % H_2O , 430 ppm HC, 10 ppm H_2SO_4 $T_G = 400 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$	21 %	59 %	20 %

5.3 Calcium- und Sulfatbestimmung

In den Ablagerungen, die bei niedriger Gas- und hoher Wandtemperatur entstehen, konnte der bei der Kohlenstoffanalyse gefundenen geringen Anteil an nichtkohlenstoffhaltigem Material (vgl. Tabelle 5.3) bestätigt werden. Es wurden bei diesen Rußproben nur geringe Calcium- und Sulfat-Gehalte bestimmt. Durch das Herabsetzen der Wandtemperatur steigen diese Werte jedoch deutlich an (vgl. Tabelle 5.4). Bei höherer Gastemperatur wurde in der Kohlenstoffanalyse ein hoher Anteil an nichtkohlenstoffhaltigen Komponenten gefunden.

Im Flammruß ohne Additive waren weder Calcium noch Sulfat nachweisbar. Durch die Zugabe von HC und Schwefelsäure jedoch wurden der Calciumgehalt leicht und der Sulfatgehalt stark erhöht. Wie auch in der Kohlenstoffanalyse beobachtet, nimmt bei niedriger Wandtemperatur und steigender Gastemperatur der Gehalt an nichtkohlenstoffhaltigen Spezies ab, wobei der Sulfatanteil deutlicher reduziert wird.

Tabelle 5.4 Zusammensetzung der Rußablagerungen im Modellkühler

	Ca ²⁺ (µg mg ⁻¹ Ruß)	SO ₄ ²⁻ (µg mg ⁻¹ Ruß)
Realruß		
1000 min ⁻¹ , 1 bar <i>T_G</i> = 180 °C, <i>T_{KW}</i> = 20 °C	12	59
Realruß		
1000 min ⁻¹ , 1 bar <i>T_G</i> = 180 °C, <i>T_{KW}</i> = 80 °C	< 1	< 10
Realruß		
2000 min ⁻¹ , 5 bar <i>T_G</i> = 300 °C, <i>T_{KW}</i> variabel	< 1	< 10
Flammruß ohne Zusätze	0	0
Flammruß mit 2 % H ₂ O, 430 ppm HC, 10 ppm H ₂ SO ₄ <i>T_G</i> = 150 °C, <i>T_{KW}</i> = 20 °C	2	37
Flammruß mit 2 % H ₂ O, 430 ppm HC, 10 ppm H ₂ SO ₄ <i>T_G</i> = 400 °C, <i>T_{KW}</i> = 20 °C	1	13

Auch bei diesen Analysen zeigte sich, dass Bedingungen, die eine Kondensation verschiedener Abgaskomponenten fördern, zu höheren Konzentrationen der Analyten in den Ablagerungen führen.

5.4 Raman-Spektroskopie

Nur für einige wenige Proben konnten erfolgreich Raman-Spektren aufgenommen werden. Viele Proben erwiesen sich durch den hohen organischen Kohlenstoffanteil als ungeeignet, da Fluoreszenz auftrat und so die Messungen behinderte.

Abbildung 5.2 zeigt die zur besseren Lesbarkeit geglätteten Raman-Spektren (gleitender Durchschnitt durch zehn Punkte des Originalspektrums) einer Realruß- sowie einer Flammrußprobe. Die Proben wurden aus zwei unter den folgenden Bedingungen auf den Prüfständen versotteten Wärmetauscherrohren entnommen. Realruß: Motorbetriebspunkt 2000 min^{-1} , 5 bar, 455 ppm HC, $T_G = 450 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$, bzw. Flammruß: 426 ppm HC, $T_G = 150 \text{ }^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$.

Die Ergebnisse zeigen, dass sich der am Modellprüfstand erzeugte Flammruß in seiner Struktur von dem im Motor entstehenden Dieselruß deutlich unterscheidet.

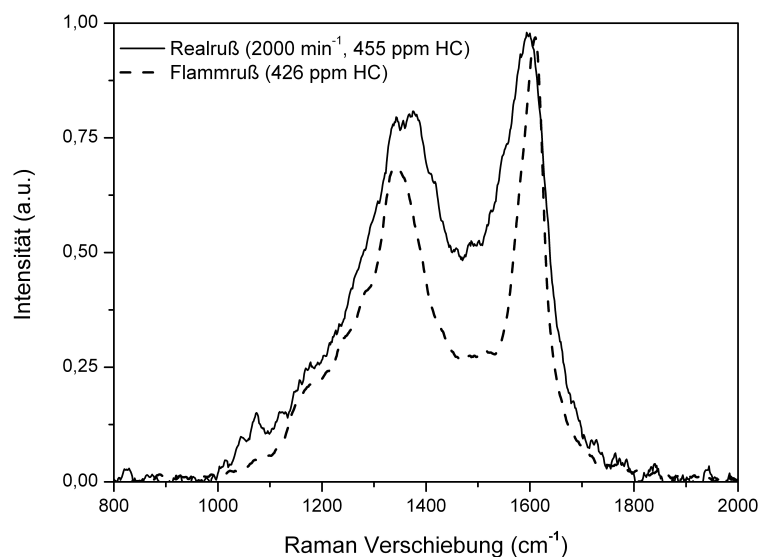


Abbildung 5.2 Vergleich der Raman-Spektren von Real- und Flammruß

Dies ist erkennbar an den großen Unterschieden in der Intensität bei 1500 cm^{-1} und der Halbwertsbreite des D1-Peaks bei 1350 cm^{-1} . Dies ist auf die unterschiedliche Art der Rußentstehung zurückzuführen. Außerdem bestätigen die Messungen einen hohen Anteil an organischen Verbindungen, erkennbar an den zusätzlichen Schultern und Banden im Bereich zwischen 1000 cm^{-1} und 1250 cm^{-1} .

5.5 Neutronenradiographie

Die mit dieser Methode gewonnenen Ergebnisse zeigen, dass sich je nach Betriebspunkt unterschiedliche Ablagerungsprofile in den Rohren ausbilden. Die Struktur der Ablagerungen variiert und die bei den Versuchen beobachteten Auswaschungseffekte werden deutlich dargestellt. Die Abbildungen 5.3 und 5.4 zeigen beispielhaft den Schichtdickenverlauf in einem über der gesamten Länge verschmutzten Kühlerrohr sowie in einem Rohr, in dem Auswaschung beobachtet werden konnte. Durch Rotation der Rohre wurde überprüft, ob die Schichtdicke über dem gesamten Umfang gleichmäßig ist. Dies konnte für die untersuchten Proben bestätigt werden.

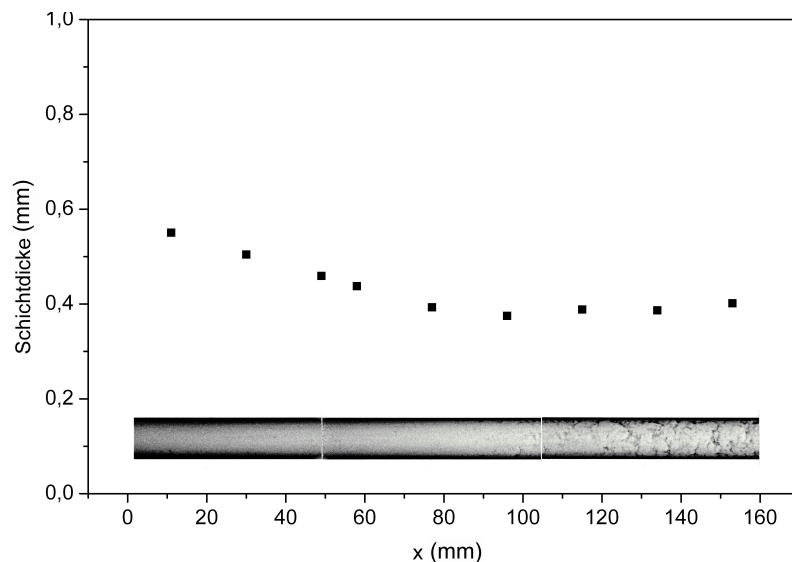


Abbildung 5.3 Schichtdickenverlauf in einem durchgehend verschmutzten Rohr. Strömungsrichtung von links nach rechts.

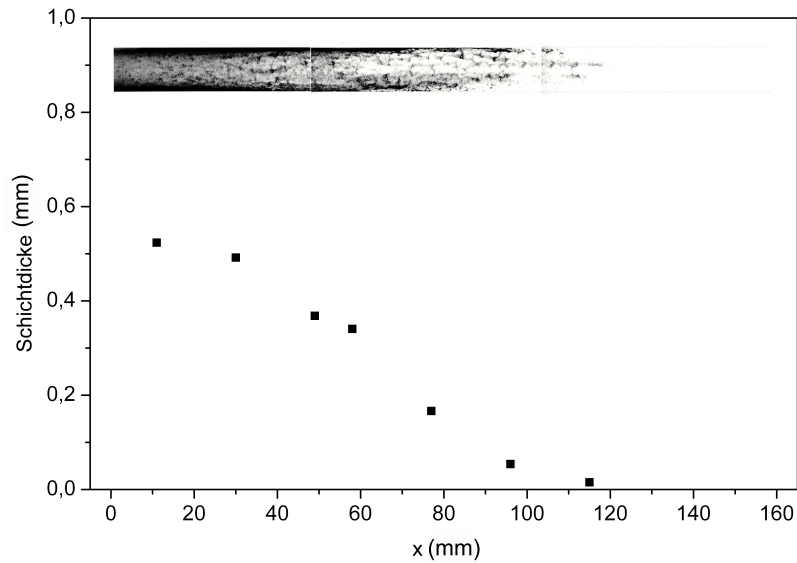


Abbildung 5.4 Schichtdickenverlauf bei beobachteter Auswaschung der Ablageungsschicht. Strömungsrichtung von links nach rechts.

Mittels Neutronenradiographie wurde unter anderem der Aufbau der Verschmutzungsschicht über der Zeit betrachtet. Die entsprechenden Versuche wurden dabei am Motorenprüfstand des LVK durchgeführt (vgl. auch [182]). Bei der Auswahl der Kühlwassertemperatur wurde darauf geachtet, eine geschlossene Verschmutzungsschicht zu erhalten. Die Schichtdickenmessungen wurden nach einer, zwei, vier und acht Stunden Laufzeit bei $T_G = 300^\circ\text{C}$ und $\dot{m}_G = 9 \text{ kg h}^{-1}$ für einen jeweils neuen, sauberen Versuchsträger durchgeführt.

Abbildung 5.5 verdeutlicht bei diesem Versuch mit einer Kühlwassertemperatur von 60°C , dass in den ersten beiden Stunden ein starkes Grundschichtwachstum eintritt mit deutlichem Abfall der Schichtdicke vom Eintritt in den Kühler zum Austritt. In den weiteren Laufzeit nach vier bzw. acht Stunden ist ein annähernd paralleler Verlauf der beiden Schichten erkennbar, wobei die Unterschiede der Schichtdicken zwischen Eintritt und Austritt geringer ausfallen als in den ersten beiden Stunden.

Die bei den Messungen gewonnenen Daten zur Schichtdicke wurden von den Projektpartnern des LVK zur Modellierung des Schichtwachstums mit Hilfe der Software Dymola genutzt. Die Ergebnisse dieser Arbeiten können dem entsprechenden Projektbericht [183] entnommen werden.

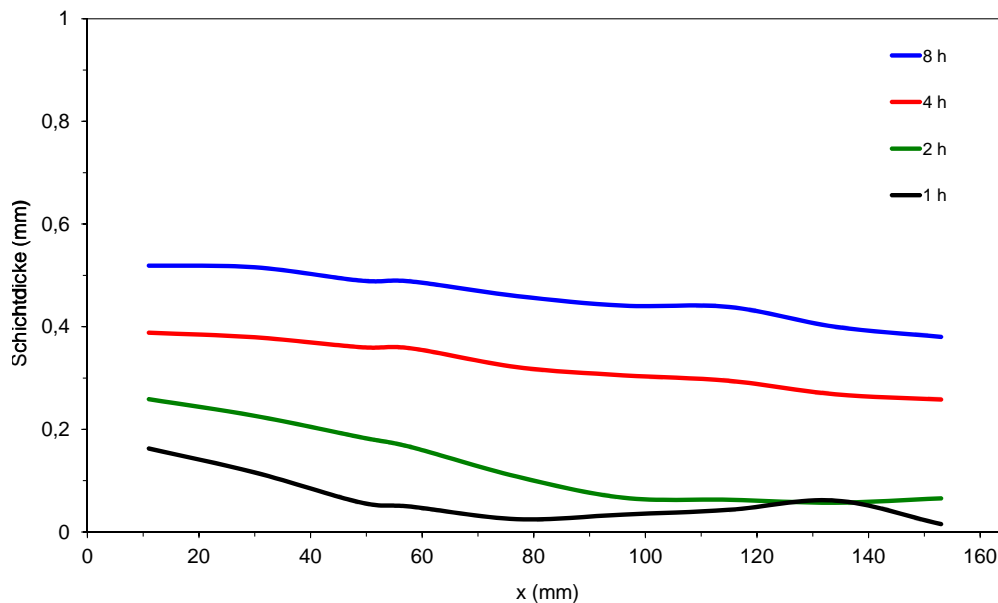


Abbildung 5.5 Verlauf der Schichtdicken zu verschiedenen Zeitpunkten bei konstantem Abgasmassenstrom (9 kg h^{-1})

5.6 Bestimmung Kondensatmassenstrom

Zunächst werden die Messwerte für den Wassergehalt vor dem Kühler mit dem theoretischen Sollwert verglichen. Dabei ist erkennbar, dass bei geringen Wassergehalten die Wiederfindung mit 30 % bis 50 % sehr gering ist, bei höheren Wassergehalten die Werte jedoch deutlich besser sind. Mögliche Ursache für dieses Phänomen sind Artefakte bei der Bestimmung des Blankwertes bzw. Schwankungen in der Förderleistung der Pumpe, die für die Wassereinspeisung verwendet wird. Dennoch konnte bei allen Messungen gezeigt werden, dass der Wassergehalt im Gas nach dem Kühler geringer ist als vor dem Kühler. Zudem konnte beobachtet werden, dass im Kühler Wassertropfen entstehen.

Aus dem gemessenen Wassergehalt wurde der tatsächlich eingegebene Massenstrom berechnet. Mit Hilfe des Wassergehaltes nach dem Kühler konnte so ein Kondensatmassenstrom bestimmt werden. Tabelle 5.5 kann entnommen werden, dass mit zunehmendem Wassergehalt der Kondensatmassenstrom zunächst ansteigt, um sich dann auf einem konstanten Niveau einzupendeln.

Tabelle 5.5 Ergebnisse zur Bestimmung des Kondensatmassenstroms

$x_{g,H_2O,th}$ (%)	x_{g,H_2O} vor Kühler (%)	Wieder- findung (%)	x_{g,H_2O} nach Kühler (%)	Eingeleitete Wassermasse (g min ⁻¹)	Kondensat- massenstrom (g min ⁻¹)
1,0	0,3 ± 0,1	30 ± 10	0,1 ± 0,03	0,23 ± 0,05	0,11 ± 0,03
1,8	0,9 ± 0,1	50 ± 6	0,4 ± 0,1	0,84 ± 0,08	0,49 ± 0,15
3,8	3,8 ± 0,1	100 ± 3	2,7 ± 0,2	3,23 ± 0,08	1,00 ± 0,07
5,5	5,9 ± 0,4	100 ± 7	4,9 ± 0,3	5,06 ± 0,35	0,93 ± 0,29

Diese Ergebnisse sollten eigentlich in die Modellierung der diffusiophoretischen Abscheideeffizienz einfließen. Aufgrund der starken Abweichungen vom Sollwert wurde dies jedoch nicht weiter verfolgt.

5.7 Ablagerungsexperimente

5.7.1 Variation der Versuchslaufzeit

Es wurde festgestellt, dass mit zunehmender Versuchsdauer die Ablagerungsmasse zunimmt. Dabei ist zu beobachten, dass erst ab einer Versuchszeit von mehr als 3 h die Rußschicht über die gesamte Rohrlänge geschlossen ist. Der Aufbau der Schicht ist dabei jedoch stark von der Zusammensetzung des Modellaerosols abhängig.

5.7.2 Trockener Ruß (Betriebspunkt A)

Im Modellkühler werden nur wenige Partikel abgeschieden, solange das Modellaerosol lediglich aus Druckluft sowie den Rußpartikeln besteht.

Bei der größten betrachteten Temperaturdifferenz ($\Delta T_{max} = T_G - T_{KW} = 280^\circ\text{C}$) wurden 13,6 % der eingetragenen Partikelmasse im Kühlerrohr abgeschieden. Wird die Temperaturdifferenz auf einen Wert von $\Delta T_{max} = 135^\circ\text{C}$ reduziert, so reduziert sich die massebezogene Ablagerungseffizienz auf 6,4 %.

Dabei sind die abgelagerten Rußpartikel gleichmäßig über das Wärmetauscherrohr verteilt. Eine weitere Vergrößerung von ΔT_{max} wirkt sich nicht weiter auf die insgesamt abgelagerte Rußmasse aus.

5.7.3 Zugabe von Wasserdampf (Betriebspunkte H und I)

Für diese Versuche wurden sowohl GfG– als auch Flammruß verwendet. Dabei wurde durch Kontrollmessungen sichergestellt, dass sich die Partikelgrößenverteilung nicht durch die Zugabe des Wasserdampfes verändert.

Vergleichbar mit dem trockenen Aerosol sind die Rußablagerungen bei Wasserdampfkonzentrationen von 2 % gleichmäßig im Kühlerrohr verteilt. Bei einer Konzentration von 5 % hingegen sind am Kühleraustritt blanke Stellen zu beobachten, die dafür sprechen, dass die Ablagerungen durch kondensiertes Wasser ausgewaschen wurden.

Neben den in Tabelle 3.4 angegebenen Betriebspunkten H und I wurde zusätzlich der Einfluss des Wasserdampfes für eine geringere Konzentration (1 %) bei sonst wie für Betriebspunkt H gleichen Bedingungen sowie bei niedrigeren Gastemperaturen ($T_G = 300 \text{ °C}$) und einer Wasserdampfkonzentration von 2 % ermittelt. Dabei zeigte sich, dass die massebezogene Abscheideeffizienz in allen vier Fällen zwischen 11,1 % und 13,3 % liegt und somit der Ablagerungseffizienz für trockenen Ruß entspricht.

Bei der niedrigeren Gastemperatur wurde zudem die Versuchsdauer variiert (1 h, 4 h, 8 h). Dabei wurde festgestellt, dass bei längerer Laufzeit die Ablagerungseffizienz auf 4,4 % absinkt, aber dennoch Ablagerungen über die gesamte Rohrlänge entstehen.

5.7.4 Zugabe von HC (Betriebspunkte F und G)

Eine HC–Konzentration von 230 ppm im Aerosol führt bei einer hohen Gas– und einer niedrigen Kühlwassertemperatur zu einer massebezogenen Abscheideeffizienz

von 11,1 %. Dies bedeutet, dass hier die HC-Konzentration die Abscheidung nicht erhöht.

Im Gegensatz dazu liegt bei einer HC-Konzentration von 430 ppm die Abscheideeffizienz zwischen 17,8 % und 22,2 %. Es werden also deutlich mehr Ablagerungen gebildet. Durch die erhöhte HC-Konzentration steigt die Wahrscheinlichkeit, dass HC-Komponenten auskondensieren und so die Ablagerungsbildung fördern.

5.7.5 Zugabe von HC und H₂O (Betriebspunkt J)

Da in realem Abgas verschiedene gasförmige Komponenten auftreten, wurde durch Kombination der einzelnen Additive versucht, das Modellaerosol dem realen Dieselabgas anzunähern.

Bei Betriebspunkt J wurden gleichzeitig Wasser und HC dem Aerosol hinzugefügt (Konzentrationen siehe Tabelle 3.4). Es wurde eine Ablagerungseffizienz von 15,6 % bestimmt. Dieser Wert liegt geringfügig über den Effizienzen für Wasserdampf und HC alleine, so dass angenommen werden muss, dass die Kombination der beiden Komponenten eine die Ablagerung fördernde Wirkung zeigt.

Zusätzlich wurde in einem weiteren Experiment die Kühlwassertemperatur auf 80 °C erhöht. Dabei ergab sich eine geringfügig höhere Abscheideeffizienz von 17,8 %.

Bei niedriger Gas- (190 °C) und Kühlwassertemperatur (20 °C) stieg die Abscheideeffizienz dagegen deutlich auf 48,8 % an. Durch die niedrige Gastemperatur wird die Kondensation begünstigt, die Rußpartikel werden aufgrund von Diffusiophorese vermehrt abgeschieden, jedoch ist gleichzeitig die Kondensatmenge zu gering, um Auswaschung herbei zu führen.

Bei geringeren Wasserdampf- und HC-Konzentrationen (1 % bzw. 230 ppm) mit $T_G = 155\text{ °C}$ und $T_{KW} = 20\text{ °C}$ betrug die Abscheideeffizienz immer noch 33,3 %.

5.7.6 Zugabe von HC, H₂O und H₂SO₄ (Betriebspunkte B, C, E, K)

Betriebspunkte B und C

Die Bedingungen der Betriebspunkte B und C unterscheiden sich nur für die Kühlwassertemperatur, die für Betriebspunkt B bei 20 °C und für Betriebspunkt C bei 80 °C lag. Die Konzentrationen der Additive betragen: Wasser 2 %, HC 430 ppm, H₂SO₄ 0,2 ppm.

Für die niedrige Kühlwassertemperatur liegt die Abscheideeffizienz zwischen 33,3 % und 44,4 %, durch Erhöhung der Kühlwassertemperatur sinkt sie auf 22,2 % ab. Es konnten wieder Kondensationseffekte beobachtet werden und die Abscheidung ist deutlich größer als bei trockenem Ruß.

Betriebspunkte E und K

Wird die H₂SO₄-Konzentration auf 10 ppm erhöht (wobei sich Wasserdampf- und HC-Gehalt nicht verändern), so steigt die Abscheideeffizienz, je nach betrachteter Gastemperatur, rechnerisch auf bis zu 100 % an. Dieses Ergebnis zeigt deutlich, dass im Diesel enthaltener Schwefel, der zu Schwefelsäure umgesetzt werden kann, bei ausreichend hohen Konzentrationen einen deutlichen Einfluss auf die Ablagerungsbildung hat.

Zum Vergleich wurden auch der Wasserdampf- sowie der HC-Gehalt drastisch erhöht (wobei die Schwefelsäurekonzentration niedrig gehalten wurde). Dadurch reduzierte sich jedoch die Abscheideeffizienz gegenüber der bei Betriebspunkt B (33,3 % bis 44,4 %) auf nur 11,1 %. Dabei ist jedoch nicht auszuschließen, dass eigentlich mehr Ablagerungen gebildet werden und der geringe Wert für die Abscheideeffizienz nur durch ein Auswaschen der Ablagerungen zustande kommt.

5.7.7 Beschreibung der beobachteten Ablagerungen

Eine Beschreibung der entstandenen Ablagerung ist an dieser Stelle nur qualitativ möglich. Es wurde beobachtet, dass bei der Anwesenheit von HC und H₂SO₄ die Ablagerungen eine flüssig-klebrige Konsistenz besitzen. Im Vergleich dazu sind die aus trockenem Ruß und die in Anwesenheit von Wasserdampf gebildeten Ablagerungen stets trocken. Dennoch konnten auch bei der Verwendung von Wasserdampf Kondensattropfen im Rohr beobachtet werden.

5.8 Bestimmung der partikelgrößenabhängigen Abscheideeffizienz

5.8.1 Abhängigkeit von den Temperaturbedingungen

Wird bei konstanter Gastemperatur ($T_G = 300^\circ\text{C}$) nur die Kühlwassertemperatur verändert, so zeigt sich, dass mit zunehmendem Unterschied zwischen Gas- und Kühlwassertemperatur die Partikelabscheideeffizienz zunimmt. Diese ist dabei von der Partikelgröße weitestgehend unabhängig. Erst für Partikel mit Mobilitätswindmessern $d_m > 150\text{ nm}$ zeigt sich ein deutlicher Anstieg der Abscheideeffizienz.

Abbildung 5.6 zeigt die Abscheideeffizienzen bei verschiedenen ΔT für einen Gasmassenstrom von $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$. Dabei wurde die Abscheideeffizienz zwischen den Punkten $x = 0\text{ mm}$ und $x = 346\text{ mm}$ ermittelt. Wird der Gasmassenstrom erhöht, so erhält man ein ähnliches Ergebnis.

Bereits ohne einen Temperaturgradienten ($T_G = T_{KW} = 20^\circ\text{C}$, $\Delta T = 0\text{ K}$) werden 25 % der Partikel abgeschieden. Dies ist darauf zurück zu führen, dass es in der durch die Geometrie des Wärmetauschers bedingten Querschnittsverengung bzw. -erweiterung zu Partikelablagerung durch Impaktion kommt, die mit erfasst wird.

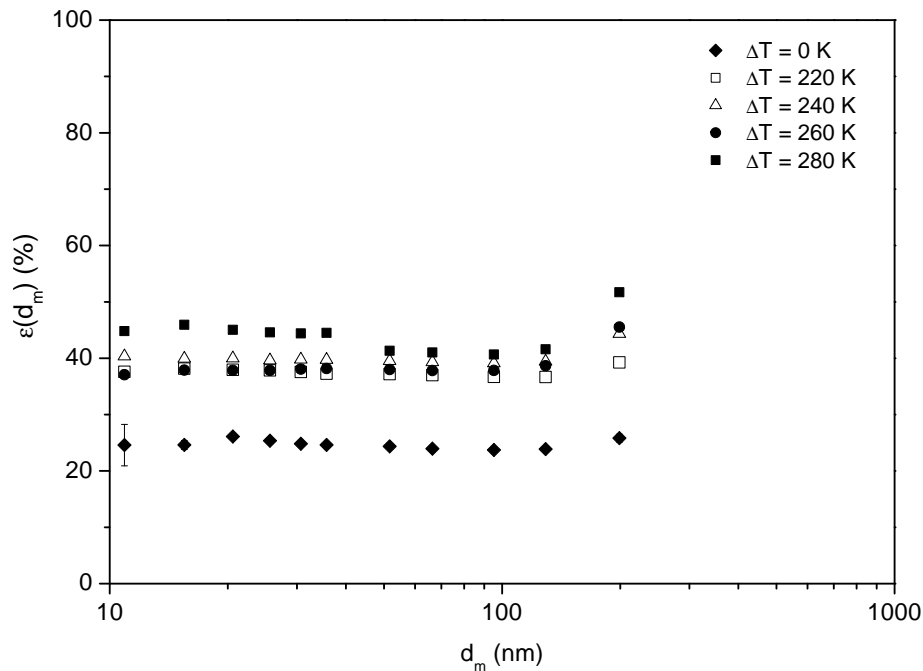


Abbildung 5.6 Partikelgrößenabhängige Abscheideeffizienz $\epsilon(d_m)$ für isotherme Bedingungen und Variation der Kühlwassertemperatur bei konstanter Gastemperatur $T_G = 300^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$

5.8.2 Abhängigkeit vom Strömungszustand

Neben dem Temperatureffekt spielt auch die Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit eine entscheidende Rolle für die Partikelablagerung im Modellkühler. Mit zunehmendem Gasmassenstrom steigen im Kühler die Strömungsgeschwindigkeit des Gases und somit die Reynolds-Zahlen an. Somit wird die Strömung turbulenter. Es werden verstärkt Partikel mit Mobilitätswindmessern $d_m < 30 \text{ nm}$ und $d_m > 100 \text{ nm}$ abgeschieden. Dadurch ergibt sich ein U-förmiger Verlauf der Abscheideeffizienz bei $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$.

Dieser Effekt tritt sowohl im isothermen Fall ($\Delta T = 0 \text{ K}$, $T_G = T_{KW} = 20^\circ\text{C}$) als auch in Anwesenheit eines Temperaturgradienten ($\Delta T = 280 \text{ K}$, $T_G = 300^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$) auf (vgl. Abbildung 5.7).

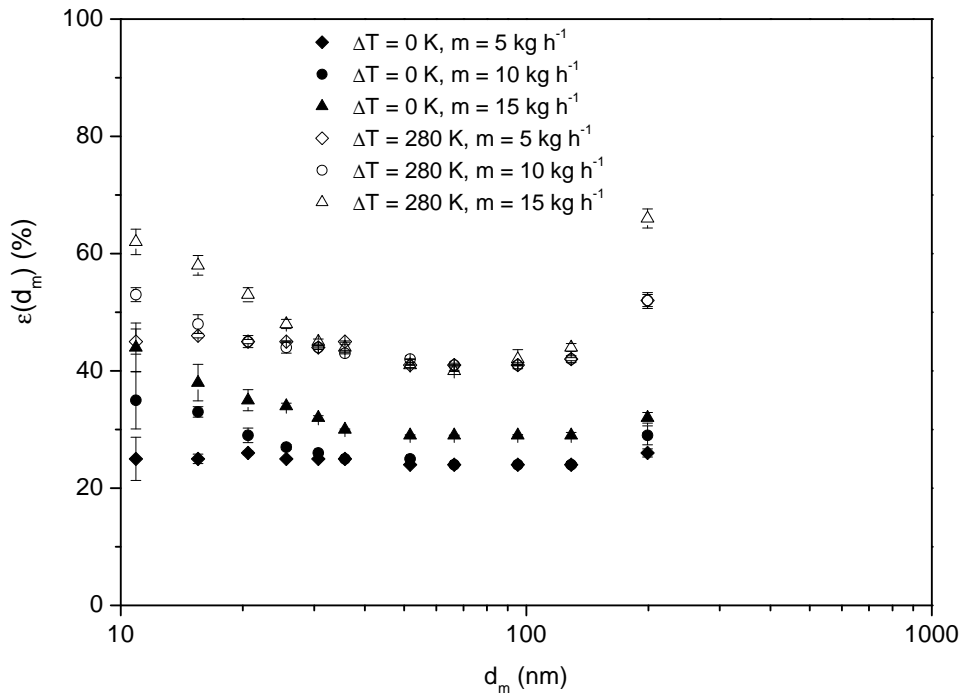


Abbildung 5.7 Größenabhängige Abscheideeffizienz für verschiedene Temperaturbedingungen und Gasmassenströme

5.8.3 Ablagerung am Kühlereintritt

Bereits bei den Ablagerungsversuchen wurde festgestellt, dass im Wärmetauscher neben den Verschmutzungen im gekühlten Bereich auch Ablagerungen im Einlaufbereich auftreten. Daher wurde die partikelgrößenabhängige Abscheideeffizienz im Kühlereintritt zwischen $x = 0$ mm und $x = 88$ mm (kurz vor der Querschnittsverengung an der Stelle, an der das Kühlerrohr beginnt) bestimmt.

Ruß ohne Zusätze bei unterschiedlichen Gastemperaturen und Strömungsbedingungen

Abbildung 5.8 zeigt einen Ausschnitt aus den Ergebnissen. Es ist zu erkennen, dass bei isothermen Bedingungen bei einem Gasmassenstrom von 1 kg h^{-1} keine Ablagerung am Kühlereintritt bestimmbar ist. Für einen Gasmassenstrom von 15 kg h^{-1} bei

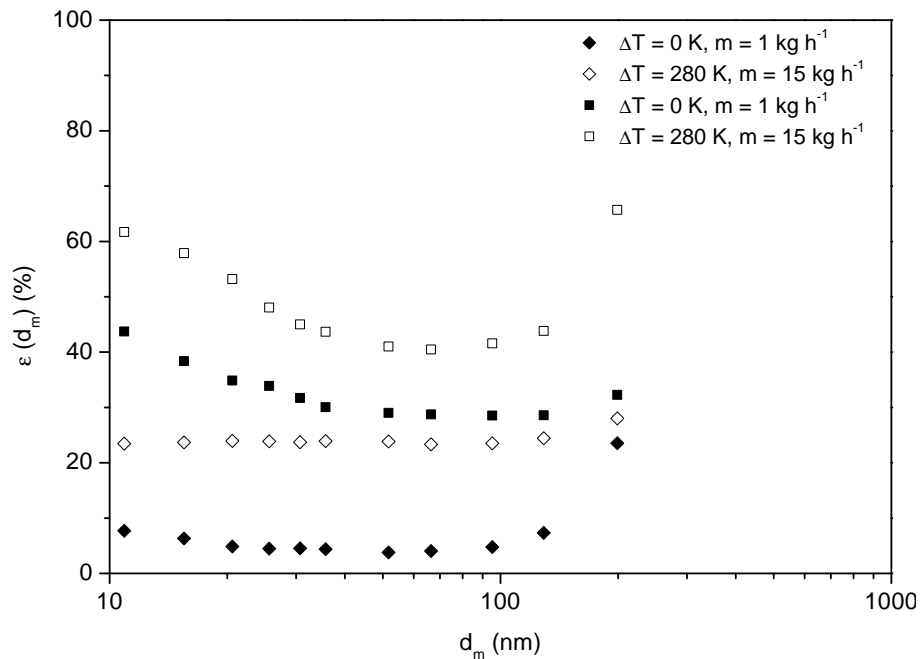


Abbildung 5.8 Abscheidung im Kühleintritt zwischen $x = 0$ mm und $x = 88$ mm

sonst identischen Bedingungen dagegen kann die Abscheideeffizienz erfasst werden. Dieser Effekt verstärkt sich durch die Gegenwart eines Temperaturgradienten. Die Werte für die Gasmassenströme $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$ und $\dot{m}_G = 10 \text{ kg h}^{-1}$ sind in dieser Abbildung der Übersichtlichkeit wegen nicht dargestellt, liegen aber zwischen den gezeigten Werten.

Werden im Kühleinlauf unterschiedliche Gastemperaturen (hier $T_G = 150^\circ\text{C}$ und $T_G = 300^\circ\text{C}$ bei konstanter Kühlwassertemperatur $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$ bei $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$) betrachtet, so wird deutlich, dass die Thermophorese bereits kurz vor dem gekühlten Bereich wirksam wird. Diese Ergebnisse sind in Abbildung 5.9 dargestellt. Bei der niedrigeren Gastemperatur ergeben sich im Einlassbereich ($x = 28$ mm, $x = 88$ mm) Abscheideeffizienzen im Bereich von 5 % bis 15 %.

Bei $T_G = 300^\circ\text{C}$ hingegen ergeben sich deutlich größere Werte von bis zu 80 % für die Abscheideeffizienz, je näher am Beginn des gekühlten Bereiches gemessen wird ($x = 88$ mm). Der dabei entstehende U-förmige Kurvenverlauf ist typisch für diese Bedingungen.

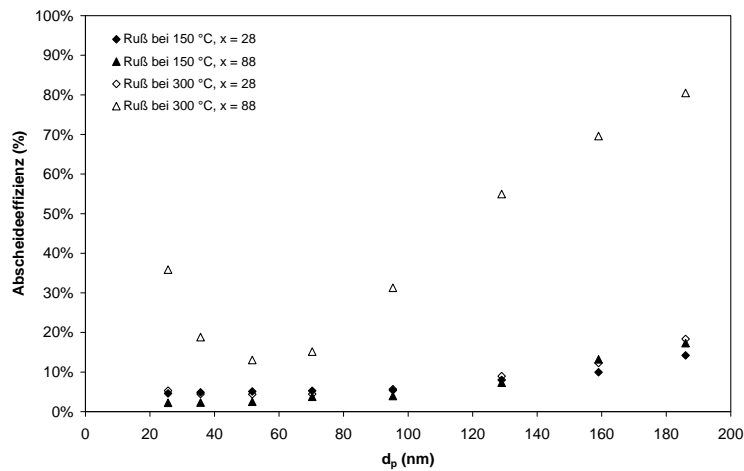


Abbildung 5.9 Abscheideeffizienz im Kühlereintritt bei unterschiedlichen Gastemperaturen, Ruß ohne Zusätze

Ruß mit 1 ppm Schwefelsäure bei $T_G = 150\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Wird bei einer niedrigeren Gastemperatur ($T_G = 150\text{ °C}$) unter sonst unveränderten Bedingungen ($T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$) dem Aerosol 1 ppm an Schwefelsäure zugesetzt, so zeigt sich, dass durch die Anwesenheit der Säure kein Unterschied in der Abscheideeffizienz feststellbar ist (vgl. Abbildung 5.10).

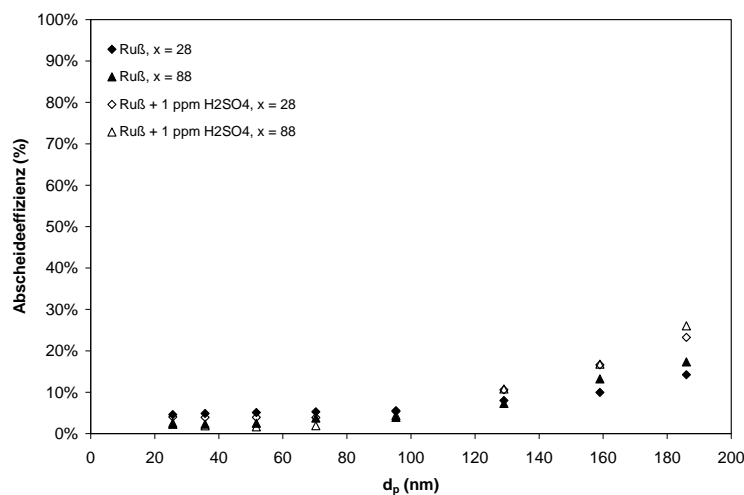


Abbildung 5.10 Abscheideeffizienz im Kühlereintritt, Vergleich von Rußaerosol und Ruß-Schwefelsäure-Aerosol bei $T_G = 150\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Ruß mit 1 ppm Schwefelsäure bei $T_G = 150\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 15\text{ kg h}^{-1}$

Wird nun der Gasmassenstrom auf $\dot{m}_G = 15\text{ kg h}^{-1}$ bei sonst gleichen Bedingungen erhöht, so werden im Einlaufbereich vermehrt Partikel abgeschieden, deren Durchmesser $d_p > 100\text{ nm}$ ist. Dies gilt sowohl für den Ruß ohne Zusätze als auch für das Aerosol mit Schwefelsäure (vgl. Abbildung 5.11).

Durch die Zugabe der Säure verstärkt sich dieser Effekt sogar, gerade bei der Messposition $x = 88\text{ mm}$, die kurz vor Beginn des gekühlten Bereiches liegt. Durch die Kühlung tritt Kondensation auf, die Ablagerung wird begünstigt.

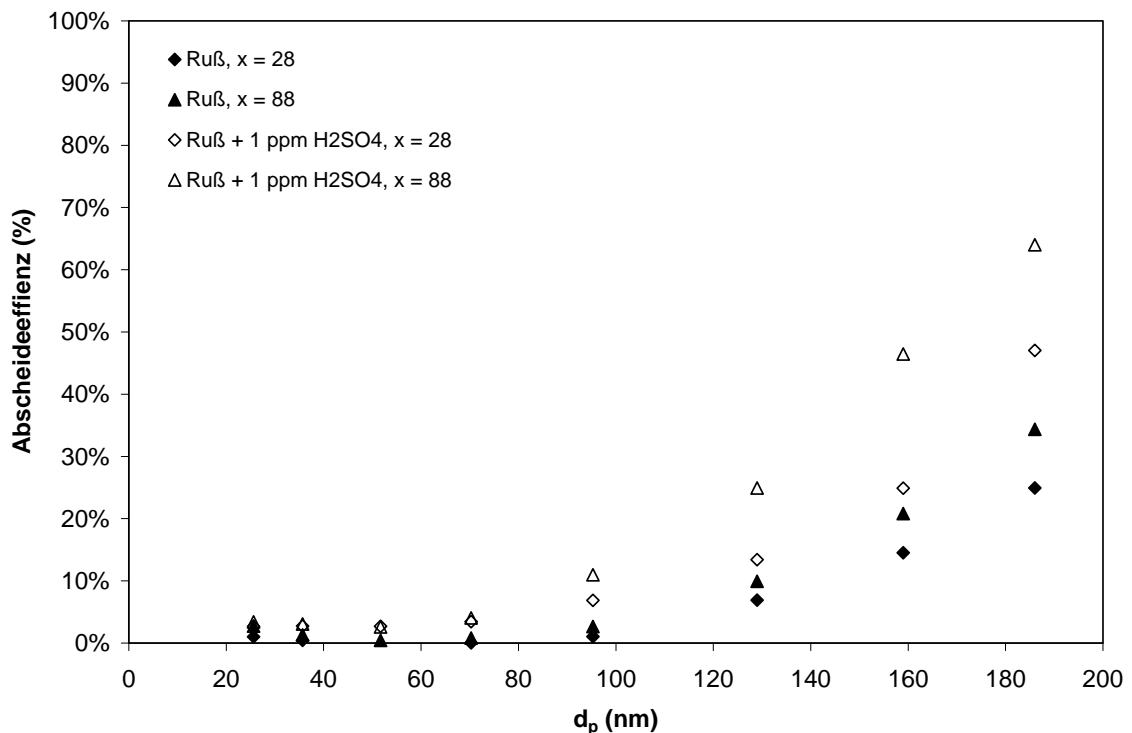


Abbildung 5.11 Abscheideeffizienz im Kühlereintritt, Vergleich von Rußaerosol und Ruß-Schwefelsäure-Aerosol bei $T_G = 150\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 15\text{ kg h}^{-1}$

5.8.4 Ortsaufgelöste Bestimmung von Partikelkonzentration und Abscheideeffizienz

GfG-Ruß mit und ohne Temperaturgradient

Wird die Abscheideeffizienz der verschiedenen Partikelgrößenklassen ortsaufgelöst über die Länge des Wärmetauscherrohres im Zentrum der Strömung bestimmt, so zeigt sich, dass sich diese nicht ändert. Dies gilt für alle betrachteten Partikelgrößen zwischen 10 nm und 200 nm, unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit im Rohr.

Abbildung 5.12 zeigt die Abscheideeffizienz von Partikeln mit $d_m = 25,6$ nm unter isothermen Bedingungen ($\Delta T = 0$ K, $T_G = T_{KW} = 20$ °C) sowie unter Bedingungen mit Temperaturgradient ($\Delta T = 280$ K, $T_G = 300$ °C, $T_{KW} = 20$ °C).

Die Partikelkonzentration wurde an fünf verschiedenen x-Positionen im Abstand von 40 mm zwischen $x = 93$ mm und $x = 253$ mm bestimmt und auf die an Punkt $x = 0$ mm bestimmte Referenzkonzentration c_0 bezogen.

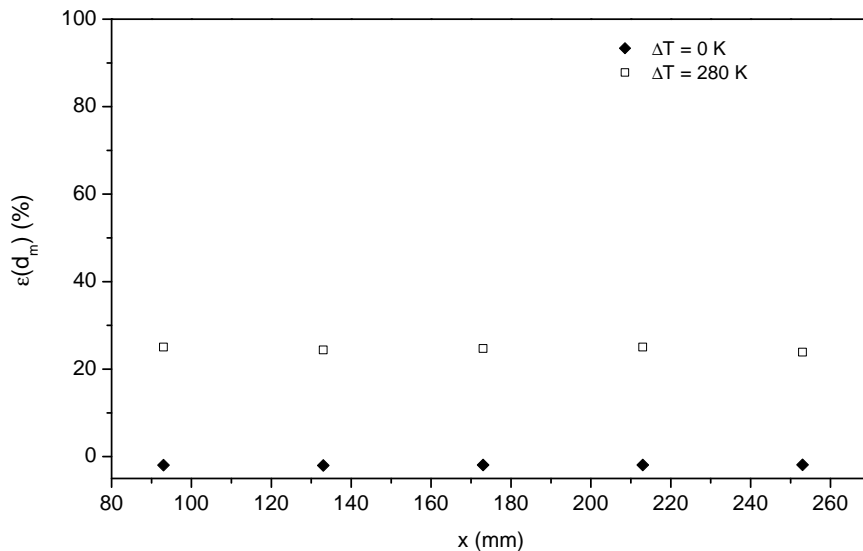


Abbildung 5.12 Abscheideeffizienz, ortsaufgelöste Messung für Partikel mit $d_m = 25,6$ nm

GfG-Ruß mit 1 ppm Schwefelsäure

Unter den Randbedingungen $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$ und $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$ wurde die Abscheideeffizienz auf der Hälfte der Rohrlänge im gekühlten Bereich ($x = 173\text{ mm}$) bestimmt. Dazu wurde einmal ein additivfreies Rußaerosol betrachtet und einmal ein Rußaerosol, dem 1 ppm Schwefelsäure beigelegt wurde.

Es zeigte sich, dass durch die Anwesenheit der Säure im Aerosol die Abscheideeffizienz deutlich über der des Aerosols ohne Zusätze liegt (vgl. Abbildung 5.13). Die Abscheideeffizienz nimmt, wie bereits früher beobachtet, mit zunehmender Partikelgröße zu. Dieser Effekt bleibt von der Zugabe der Säure unbeeinflusst.

Abbildung 5.14 zeigt die Ergebnisse der Messungen bei $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$ und $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$ für zwei ausgewählte Partikelgrößen ($d_p = 25,6\text{ nm}$ sowie $d_p = 159\text{ nm}$). Die Abscheideeffizienz ist abhängig vom Messort dargestellt. Sie bleibt im Rahmen des Streubereiches, wie oben bereits beschrieben, konstant. Es wurde erneut eine Zunahme der Abscheideeffizienz mit zunehmender Partikelgröße festgestellt. Durch

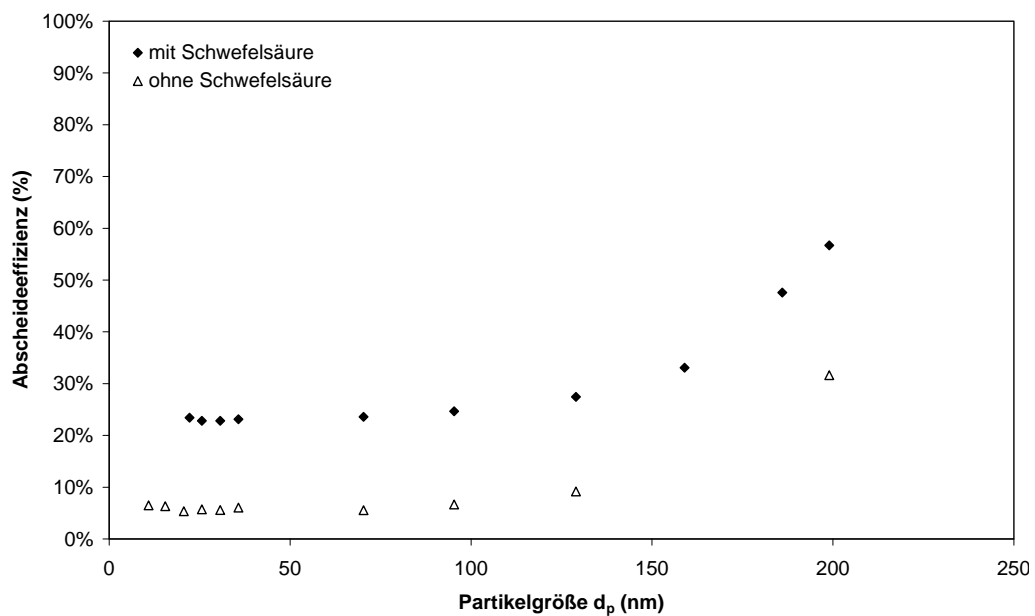


Abbildung 5.13 Vergleich Abscheideeffizienzen von Rußaerosol ohne Zusätze und Rußaerosol mit 1 ppm Schwefelsäure zugesetzt ($x = 173\text{ mm}$).

die Zugabe von Schwefelsäure wird eine geringe Abnahme der Abscheideeffizienz festgestellt. Durch Kondensation im Kühler können sich Schwefelsäuretröpfchen bilden, die bei der Konzentrationsbestimmung im Kernzähler mit erfasst werden und so die Abscheideeffizienz scheinbar reduzieren.

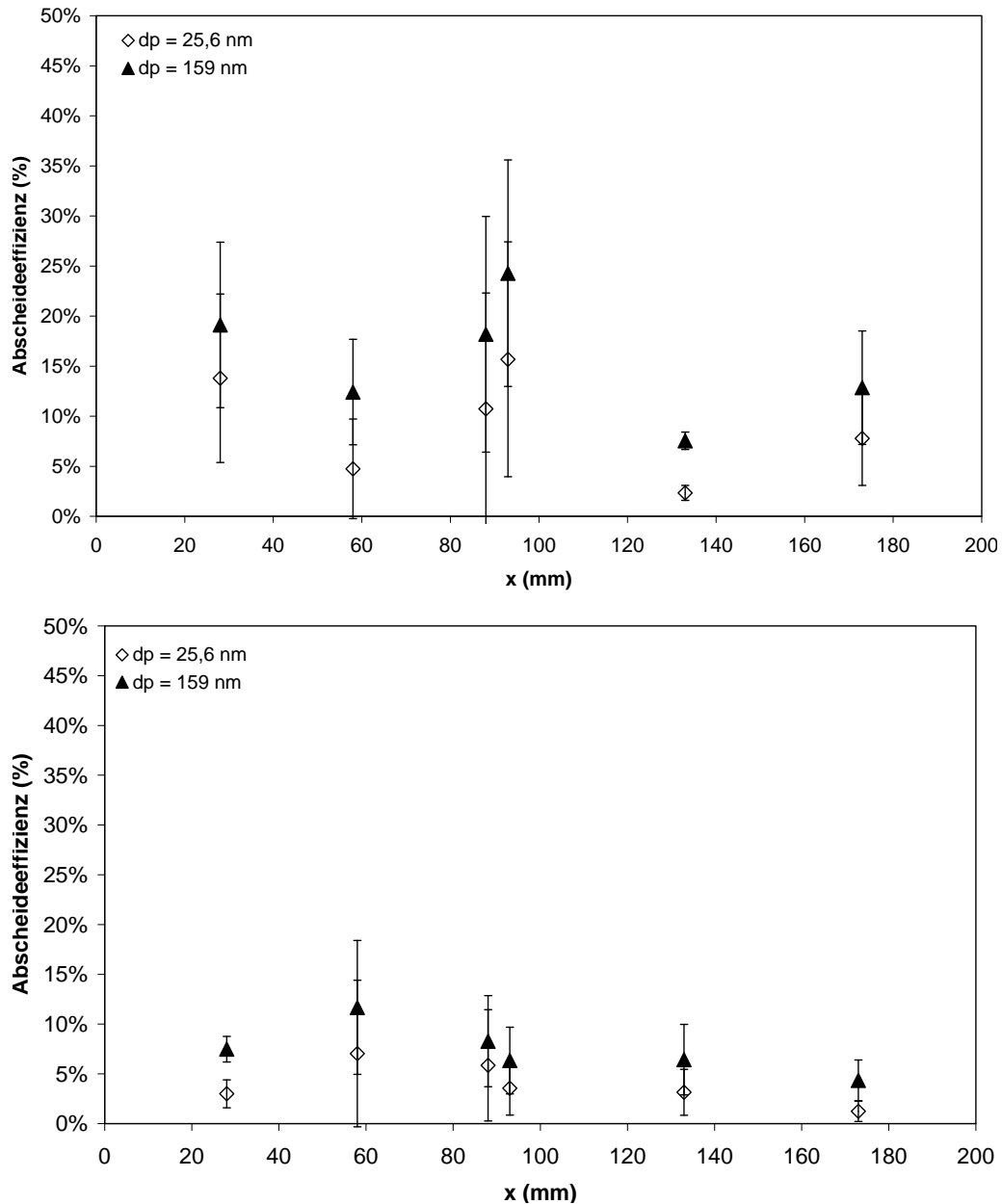


Abbildung 5.14 Vergleich der Abscheideeffizienzen über die gesamte Kühlerlänge. Oben: Ruß ohne Zusätze. Unten: Ruß mit 1 ppm Schwefelsäure

5.8.5 Zugabe von HC

Ebenso wie für Schwefelsäure wurde der Einfluss von Kohlenwasserstoffen auf die Abscheideeffizienz unter verschiedenen Bedingungen untersucht. Dafür wurden als HC-Zusatz sowohl n-Hexadecan ($C_{16}H_{34}$) als auch n-Dodecan ($C_{12}H_{26}$) verwendet. Allerdings wurde bei der Verwendung von n-Hexadecan festgestellt, dass sich die Partikelzahl über die Kühlerlänge erhöht. Dies wurde auf Kondensation des Hexadecans zurückgeführt. Durch die Bildung von Tropfen, die als zusätzliche Partikel mitgezählt werden, reduziert sich die Abscheideeffizienz. Nur bei wenigen Messungen konnte eine Erhöhung der Abscheideeffizienz festgestellt werden. Diese Ergebnisse waren allerdings nicht reproduzierbar und werden an dieser Stelle nicht diskutiert. Die Verwendung des n-Dodecans lieferte bessere Ergebnisse. Dessen Konzentration im Gas betrug 300 ppm. Die Ergebnisse werden anhand dreier ausgewählter Partikelgrößen präsentiert, um eine übersichtliche Darstellung gewährleisten zu können.

Ruß mit 300 ppm $C_{12}H_{26}$ bei $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Im Gegensatz zu den Versuchen mit Schwefelsäure war unter den hier betrachteten Temperaturbedingungen bei Zugabe des Kohlenwasserstoffs ein starker Anstieg der Abscheideeffizienz erwartet worden.

Die Ergebnisse zeigten jedoch, vor allem für Partikel mit $d_p < 150\text{ nm}$, eine Verschiebung der Abscheideeffizienz in Richtung negativer Werte (vgl. Abbildung 5.15). Dies ist nur möglich, wenn im Kühler Partikel, d.h. Tropfen, entstehen, da die Eintrittskonzentration der Partikel konstant ist. Nur für Partikel mit $d_p > 150\text{ nm}$ waren positive Werte für die Abscheideeffizienz bestimmbar, allerdings wurde zwischen den Ergebnissen dreier Messungen eine starke Variation gefunden. Der Übersichtlichkeit wegen sind nur die Standardabweichungen der Messungen mit der größten Streuung dargestellt.

Die Versuchslaufzeit bei jeder Messung betrug 5 Stunden. Erstaunlich war, dass der Kühler nach dieser Versuchslaufzeit keine nennenswerte Verschmutzung zeigte, obwohl gerade bei diesen Bedingungen mit starker Kondensation gerechnet wurde.

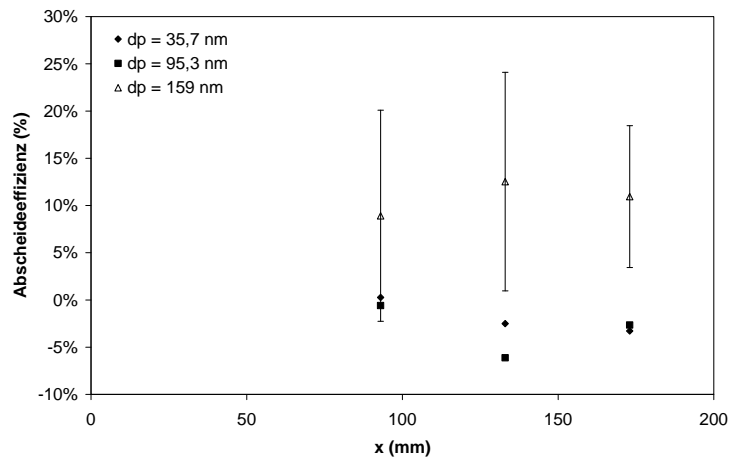


Abbildung 5.15 Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $n = 3$. $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Ruß mit 300 ppm $C_{12}H_{26}$ bei $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Wurde bei sonst gleichbleibenden Bedingungen die Kühlwassertemperatur erhöht, so zeigte sich, dass auch für Partikel $> 150\text{ nm}$ die Abscheideeffizienz in Richtung negativer Werte verschoben wird (vgl. Abbildung 5.16). Auch hier wurde jede Messung drei Mal wiederholt, wobei wieder eine große Varianz zwischen den Daten zu beobachten war. Der Kühler bleibt sauber, die Messdaten sind vergleichbar mit den Ergebnissen für Rußaerosol ohne Zusätze bei gleichen Temperaturbedingungen.

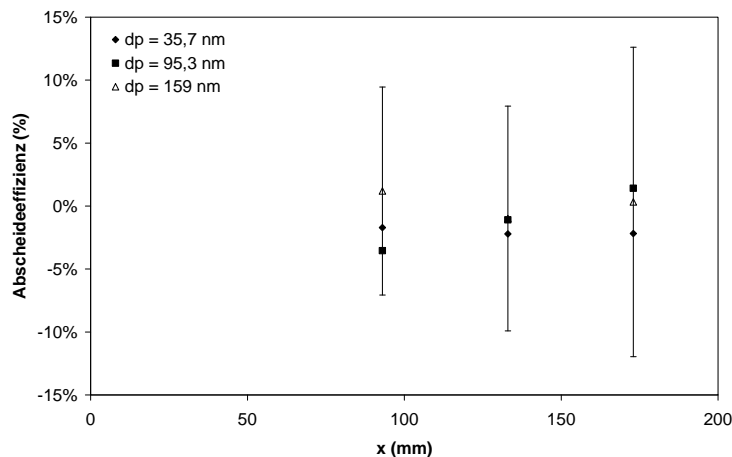


Abbildung 5.16 Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $n = 3$. $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

5 Ergebnisse und Diskussion

Ruß mit 300 ppm $C_{12}H_{26}$ bei $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Für die genannten Bedingungen wurden nur zwei Wiederholungen der Messungen durchgeführt, da sich im untersuchten Kühlerbereich wieder eine deutliche Variation in den Ergebnissen abzeichnete (vgl. Abbildung 5.17). Diesmal wurde jedoch eine massive Verschmutzung des Kühlers nach den Versuchen festgestellt. Der Kohlenwasserstoff wurde auskondensiert und bildete einen deutlichen Film auf der Kühlerwand, der durch die hohe Gastemperatur regelrecht festgebacken wurde.

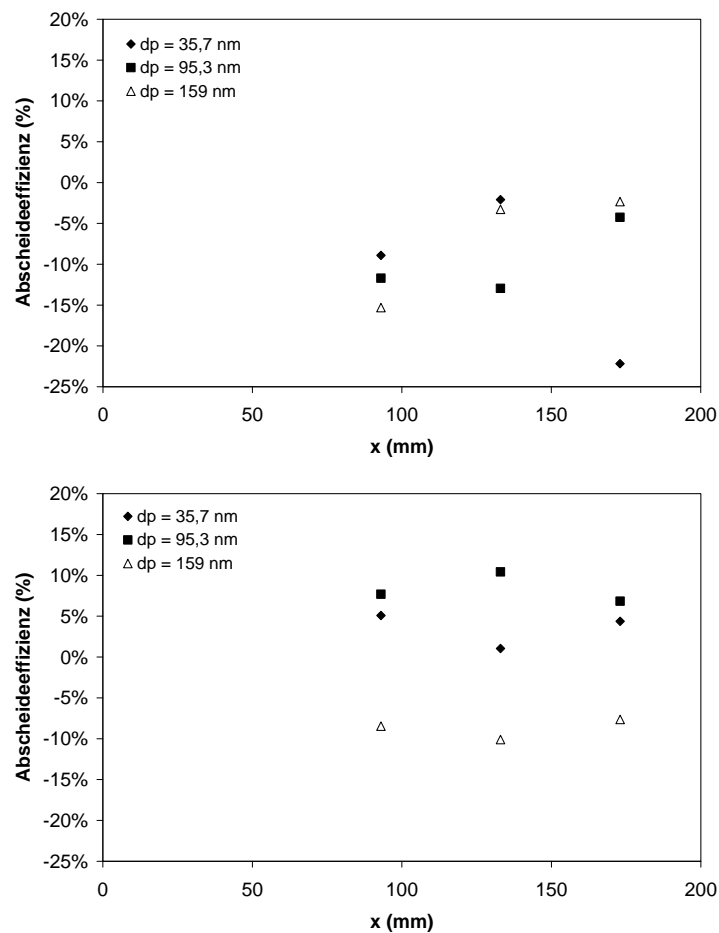


Abbildung 5.17 Ergebnisse zweier Versuche zur Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Ruß mit 300 ppm $C_{12}H_{26}$ bei $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Unter diesen Bedingungen konnte eine Zunahme in der Abscheideeffizienz nur für Partikel $>159\text{ nm}$ beobachtet werden, bei kleineren Partikeln ergaben sich wieder negative Abscheideeffizienzen. Bei diesem Versuch waren jedoch die Ergebnisse der beiden durchgeführten Messungen vergleichbar (vgl. Abbildung 5.18). Wegen der höheren Wandtemperatur ist Kondensation weniger wahrscheinlich, daher entstehen keine Artefakte. Auch war der Kühler nach dem Versuch deutlich sauberer als bei der niedrigeren Kühlwassertemperatur.

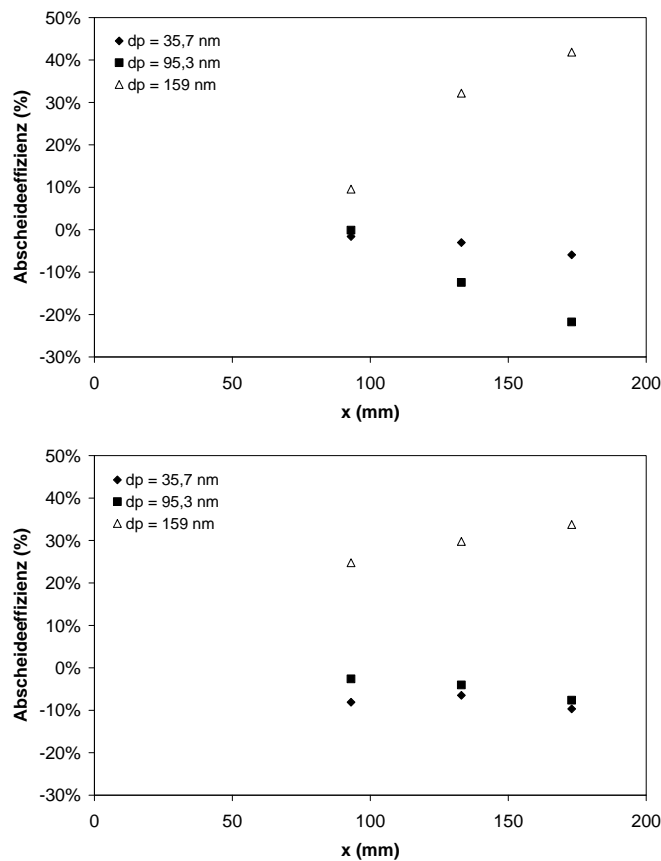


Abbildung 5.18 Ergebnisse zweier Versuche zur Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

5.8.6 Zugabe von Wasserdampf

Bei der Zugabe von Wasserdampf konnten ebenfalls keine zufriedenstellenden Ergebnisse erzielt werden. Unter den betrachteten Bedingungen kondensiert der Wasserdampf spätestens im Messgerät aus und verfälscht so die Messung. Es wurde versucht, das Abgas auf Temperatur zu halten sowie das Gas vor der Zuführung in den Partikelzähler zu trocknen. Diese Maßnahmen zeigten aber keinen Erfolg.

Bei einigen wenigen Messungen konnte gezeigt werden, dass sich im Vergleich zum reinen Ruß-Aerosol die Abscheideeffizienz kaum ändert, wenn dem System Wasserdampf zugegeben wird (vgl. Abbildung 5.19).

Abbildung 5.19 zeigt deutlich, dass die Ergebnisse bei den verschiedenen Messungen deutlich schwanken, vor allem bei der Zugabe von n-Dodecan bei einer hohen Gastemperatur. Ein ähnlicher Effekt konnte jedoch auch schon bei den Ablagerungsexperimenten festgestellt werden (vgl. Kapitel 5.7 und Tabelle 5.6). Die Kondensation führt zu zusätzlichen Partikeln, die vom Kernzähler mit erfasst werden, wodurch die Konzentration ansteigt und die Abscheideeffizienz stark schwankt.

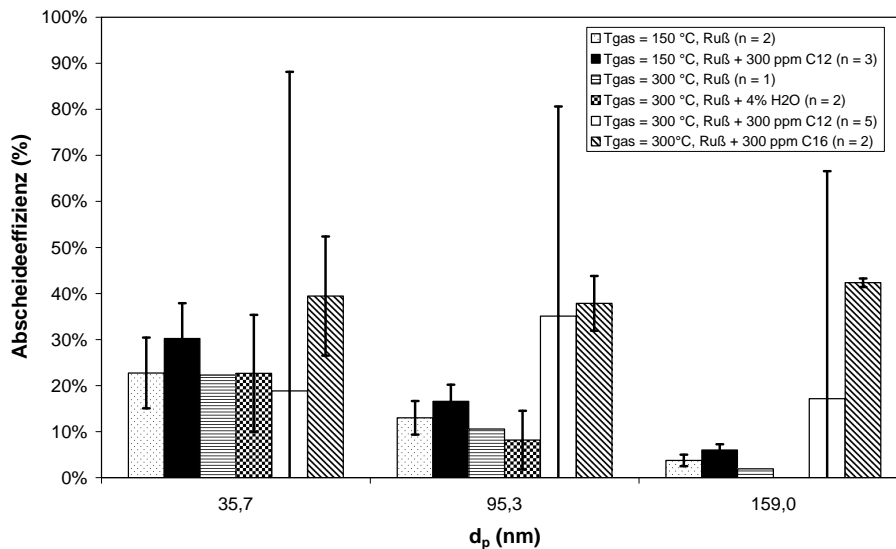


Abbildung 5.19 Vergleich der Abscheideeffizienz einiger ausgewählter Partikelgrößen bei verschiedenen Bedingungen. Messung über gesamte Kühlerlänge

Tabelle 5.6 Übersicht der Ergebnisse der Ablagerungsversuche

	T_G (°C)	T_{KW} (°C)	Aerosolzusammensetzung	ϵ_m (%)
A	160	80	Ruß	7 ± 0
B	150	20	Ruß, HC, H ₂ O	33
C	300	20	Ruß	14 ± 10
D	400	20	Ruß, H ₂ O	11 ± 2
E	400	20	Ruß, HC	21 ± 2
F	400	20	Ruß, HC, H ₂ O, H ₂ SO ₄	58 ± 43

Zudem unterliegen die Partikel im Zentrum der Strömung deutlich geringeren Kräften, die von den vorherrschenden Mechanismen ausgeübt werden, als solche Partikel, die in Wandnähe in den Wärmetauscher eintreten. Da der Modellkühler zudem einen vergleichsweise großen Rohrquerschnitt aufweist, werden die Partikel kaum aus ihrer Flugbahn abgelenkt und weiterhin erfasst, da auch die Messsonde einen verhältnismäßig großen Querschnitt besitzt.

5.9 Effekte der Kondensation

Die Zugabe von n-Dodecan führte bei verschiedenen Temperaturbedingungen zu deutlichen Unterschieden in der Ablagerungsbildung. Die Fotos in Abbildung 5.20 zeigen deutlich, dass Kondensation und damit Diffusiophorese bei niedrigen Kühlmitteltemperaturen zu verstärkter Ablagerungsbildung führen. Bei genügend hohen Wandtemperaturen und niedrigen Rußkonzentrationen (monodisperses Aerosol mit 10^4 Partikel pro cm^3) entstehen dagegen kaum Ablagerungen.

Niedrige Gastemperaturen sorgen dafür, dass das auskondensierte Dodecan flüssig bleibt, bei hohen Gastemperaturen kann die Ablagerung regelrecht auf der Kühlerwand festbacken und so erheblich zu einer Reduktion der Kühlerleistung beitragen. Auch die Struktur der Ablagerungen, die durch Kondensation gebildet werden, ist vergleichbar mit dem Gefüge der Ablagerungen, die am Motor entstehen. Abbildung 5.21 zeigt endoskopische Aufnahmen der Versottungen, die nur durch Kondensation erzeugt wurden, im direkten Vergleich zu Ablagerungen aus dem Motorbetrieb.

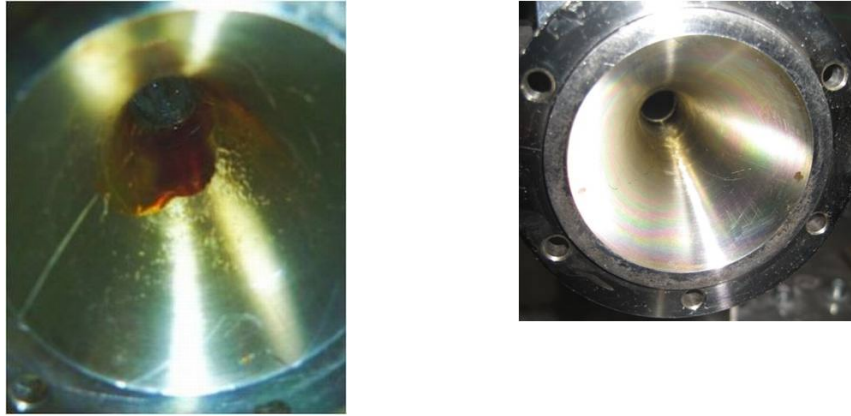


Abbildung 5.20 Kondensatbildung. Links: $T_G = 300^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$. Rechts: $T_G = 300^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 80^\circ\text{C}$

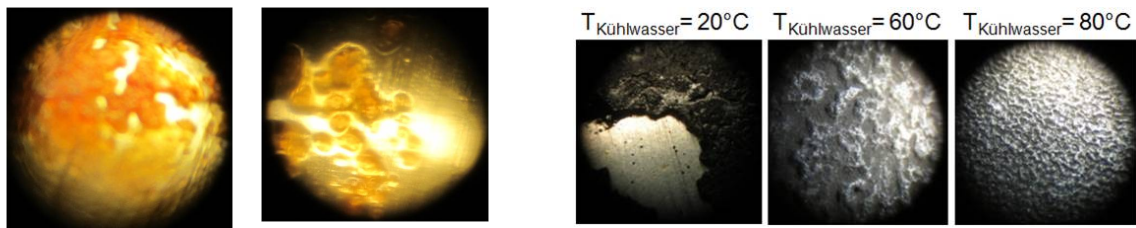


Abbildung 5.21 Links: Struktur des n-Dodecan-Kondensats (bei $T_G = 300^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$). Rechts: Rußablagerungen am realen Motor bei unterschiedlichen Wandtemperaturen [136]

5.10 Berechnung Diffusion

Mit Hilfe der Gormley-Kennedy-Gleichungen (Gleichungen 4.41 und 4.42) wurde für verschiedene Temperatur- und Strömungsbedingungen im Modellwärmetauscher die Abscheideeffizienz berechnet. Die Abbildungen 5.22, 5.23 sowie 5.24 zeigen die Ergebnisse für verschiedene Massenströme. Es ist erkennbar, dass der Diffusionseinfluss umso größer ist, je kleiner die Partikel sind und je geringer der Gasmassenstrom ist. Es ergibt sich somit eine Abhängigkeit von der Verweilzeit der Partikel im Kühler. Da diese jedoch aufgrund der hohen Strömungsgeschwindigkeiten im Realfall sehr klein ist, kann aus diesen Ergebnissen gefolgert werden, dass die reine Diffusion für die Ablagerungsbildung im Modellkühler keine Rolle spielt. Die experimentellen Messungen haben jedoch gezeigt, dass auch unter isothermen Bedingungen Partikel abgeschieden werden (vgl. Kapitel 5.8.1). Da dieser Effekt gerade für Partikel mit Durchmessern $d_p > 100$ nm auftritt, lässt sich daraus auf wirkende Trägheitskräfte schließen, die durch die turbulente Verwirbelung des Gases entstehen.

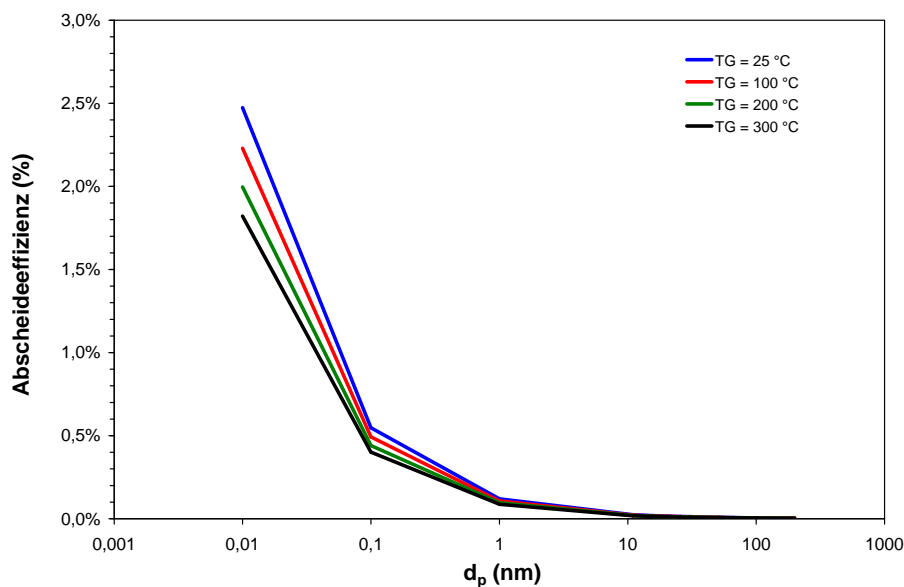


Abbildung 5.22 Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$

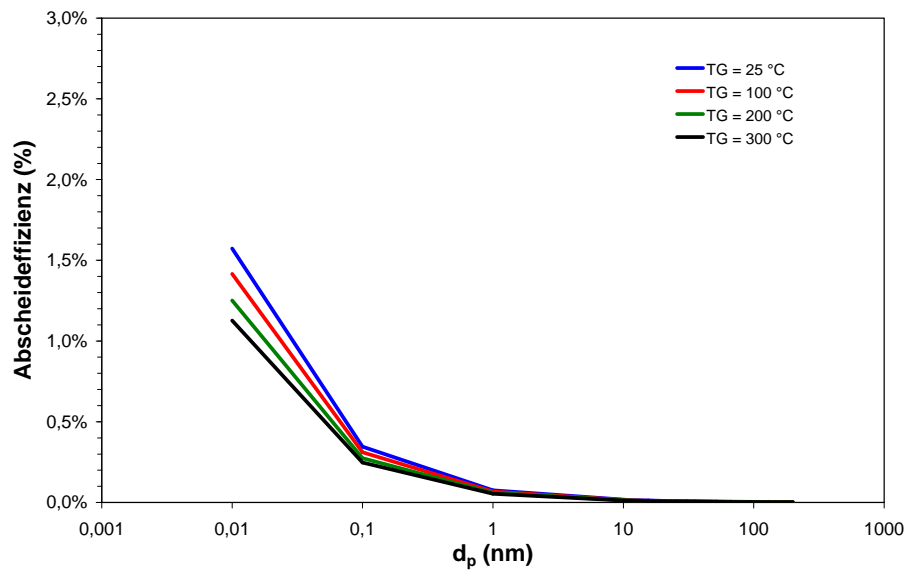


Abbildung 5.23 Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 10 \text{ kg h}^{-1}$

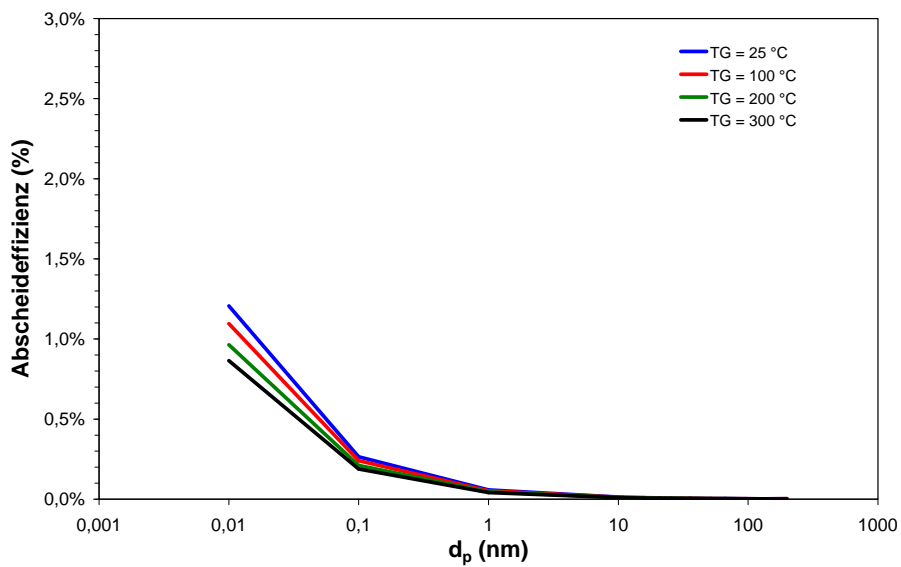


Abbildung 5.24 Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$

5.11 Berechnung Thermophorese

5.11.1 Verhalten der thermophoretischen Geschwindigkeit bei Änderung der Temperaturbedingungen

Die Abbildungen 5.25 und 5.26 zeigen, wie sich die thermophoretische Geschwindigkeit unter verschiedenen Voraussetzungen verändert.

Wird die Gastemperatur konstant gehalten und die Wandtemperatur verändert, so ist deutlich ein logarithmischer Zusammenhang zwischen der thermophoretischen Geschwindigkeit und der maximalen Temperaturdifferenz $\Delta T = T_G - T_W$ zu erkennen.

Wird jedoch die Wandtemperatur konstant gehalten und die Gastemperatur erhöht, so steigt die thermophoretische Geschwindigkeit mit zunehmender Temperaturdifferenz deutlich stärker an. Hier besteht ein linearer Zusammenhang. Daraus folgt, dass eine Änderung der Gastemperatur einen größeren Einfluss auf die Wirkung der Thermophorese hat.

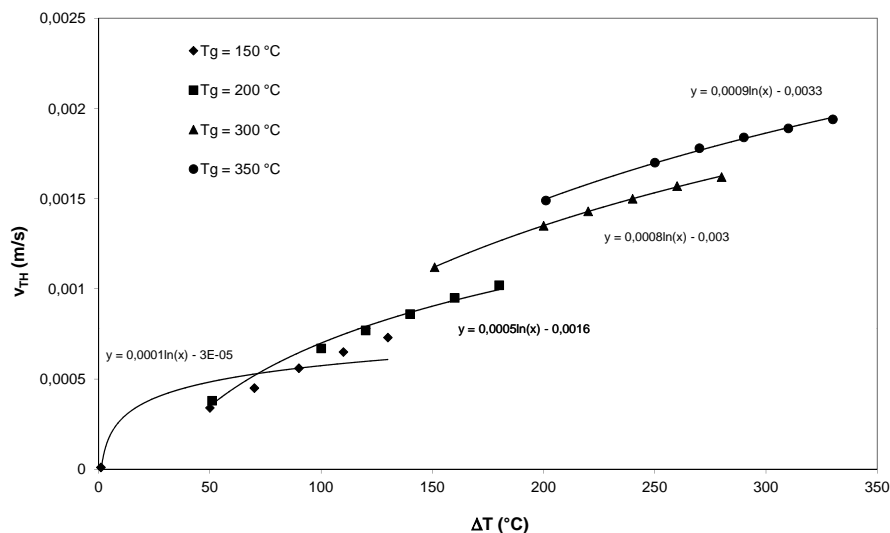


Abbildung 5.25 Änderung der thermophoretischen Geschwindigkeit mit abnehmender Wandtemperatur bei gleichbleibender Gastemperatur

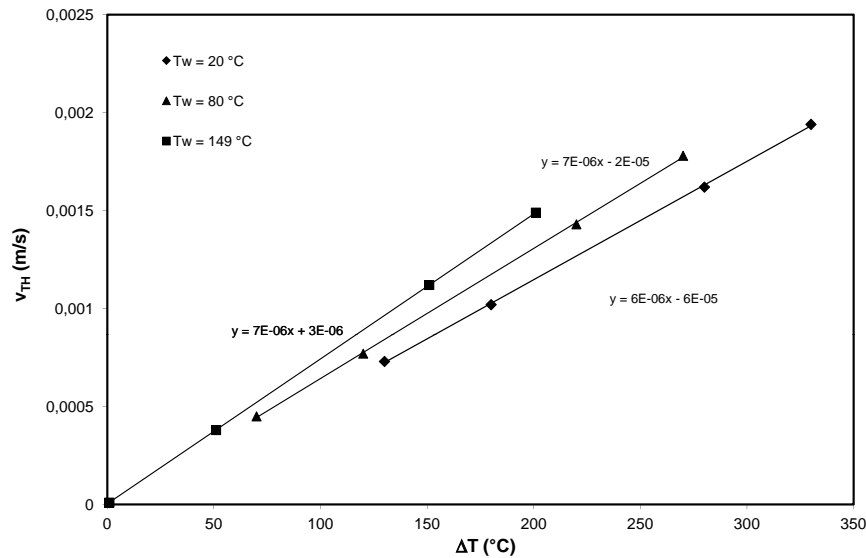


Abbildung 5.26 Änderung der thermophoretischen Geschwindigkeit mit zunehmender Gastemperatur bei gleichbleibender Wandtemperatur

5.11.2 Verhalten der thermophoretischen Geschwindigkeit bei Änderung des Strömungszustandes

Wird im Kühler der Gasmassenstrom erhöht, so hat das auf die thermophoretische Geschwindigkeit keinerlei Auswirkung, da diese aufgrund ihrer Definition nicht vom Strömungszustand abhängig ist (vgl. Gleichung 4.14). Auf die Abscheideeffizienz hat eine Änderung des Gasmassenstroms dennoch eine Auswirkung, da dieser direkt die Verweilzeit des Gases im Kühler beeinflusst. So kann durch eine Erhöhung des Gasmassenstromes der Einfluss der Thermophorese deutlich verringert werden, wie die in Tabelle 5.7 zusammengefassten Ergebnisse darstellen. Zudem muss beachtet werden, dass sich durch Änderung des Strömungszustandes auch der Temperaturgradient ∇T und somit auch die thermophoretische Geschwindigkeit verändern kann.

Genauso hat eine Änderung des Druckes im betrachteten Bereich keinen Einfluss auf τ_{TP} . Auch hier wird nur die Verweilzeit des Gases im Kühler direkt von der Parameteränderung (Druck, Temperatur) beeinflusst. Daher ergibt sich nur eine geringe Veränderung der Abscheideeffizienz bei Erhöhung des Druckes von 1 bar auf 10 bar (vgl. Tabelle 5.8).

Tabelle 5.7 Thermophoretische Abscheideeffizienz ϵ_{th} bei $p_{ges} = 1 \text{ bar} = \text{konstant}$.
Oben: $\dot{m}_G = 1 \text{ kg h}^{-1}$. Unten: $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$

\dot{m}_{ges} (kg h^{-1})	H (m)	E		E	
		$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 149^\circ\text{C}$	$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 149^\circ\text{C}$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$
1	0,00001	3 %	314 %	429 %	680 %
	0,00005	1 %	65 %	88 %	131 %
	0,0005	0 %	6 %	9 %	13 %
	0,005	0 %	1 %	1 %	1 %
15	0,00001	0 %	21 %	29 %	40 %
	0,00005	0 %	4 %	6 %	8 %
	0,0005	0 %	0 %	1 %	1 %
	0,005	0 %	0 %	0 %	0 %

Tabelle 5.8 Thermophoretische Abscheideeffizienz ϵ_{th} bei $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1} = \text{konstant}$. Oben: $p_{ges} = 1 \text{ bar}$. Unten: $p_{ges} = 10 \text{ bar}$

p_{ges} (bar)	H (m)	E		E	
		$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 149^\circ\text{C}$	$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 149^\circ\text{C}$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$
1	0,00001	1 %	64 %	86 %	140 %
	0,00005	0 %	13 %	18 %	27 %
	0,0005	0 %	1 %	2 %	3 %
	0,005	0 %	0 %	0 %	0 %
10	0,00001	1 %	64 %	90 %	133 %
	0,00005	0 %	13 %	18 %	27 %
	0,0005	0 %	1 %	2 %	3 %
	0,005	0 %	0 %	0 %	0 %

5.11.3 Verhalten der thermophoretischen Abscheideeffizienz in Abhängigkeit zum Wandabstand

Wichtig für die Wirkung der Thermophorese ist auch der Abstand der Partikel H zur Kühlerwand bei Eintritt in den Kühler. Abbildung 5.27 zeigt, die Zunahme der Abscheideeffizienz mit abnehmendem Abstand des betrachteten Partikels zur Kühlerwand.

Dieses Ergebnis deckt sich gut mit den Ergebnissen aus den orts aufgelösten Partikelkonzentrationsbestimmungen (vgl. Kapitel 5.8). Dabei konnte im Zentrum der Strömung und damit in großem Abstand zur Kühlerwand keine Zunahme der Abscheideeffizienz festgestellt werden.

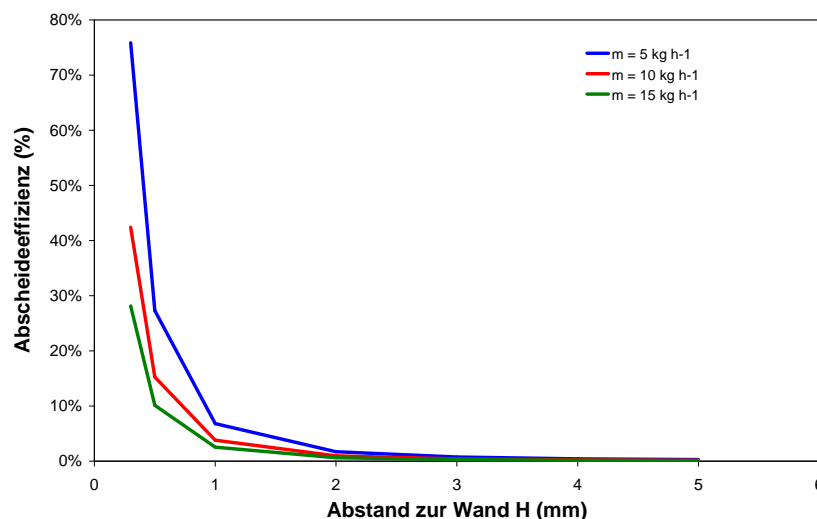


Abbildung 5.27 Zunahme Abscheideeffizienz mit Abnahme des Abstandes zur Wand

5.11.4 Vergleich der verschiedenen Berechnungsansätze

Abbildung 5.28 zeigt die für verschiedene Gastemperaturen ($T_G = 100^\circ\text{C}$, 200°C , 300°C), eine Kühlwassertemperatur von $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$ und einen Gasmassenstrom von $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$ berechneten Abscheideeffizienzen nach den in Kapitel 4.3.3 beschriebenen Ansätzen von Messerer, Romay et al., Byers und Calvert, Nishio et al.

sowie Batchelor und Shen. Wie bereits oben dargestellt, lässt sich nach Messerer keine Abscheidung durch Thermophorese bei gegebenen Bedingungen und der verwendeten Kühlergeometrie erwarten. Die anderen Ansätze zeigen deutlich stärkere zu erwartende Abscheideeffizienzen von 5 % bis 10 %, nach Batchelor und Shen können sogar bis zu 30% der Partikel abgeschieden werden. Wird die Wandtemperatur erhöht, nehmen die Abscheideeffizienzen, abhängig von der verwendeten Theorie, nur um 1 % bis 5 % ab. Eine Erhöhung des Gasmassenstroms verändert die Abscheideeffizienz kaum. Zusätzlich wurde die Berechnung für den isothermen Fall bei einer Gastemperatur von 25 °C sowie einer Kühlwassertemperatur von 20 °C für alle fünf Ansätze durchgeführt. Da kein treibender Temperaturgradient vorliegt, liegen die Werte der berechneten Abscheideeffizienz unter einem Prozent. Jede im isothermen Fall dennoch experimentell bestimmte Abscheideeffizienz muss demnach auf andere Abscheidemechanismen zurückgeführt werden.

Zudem sind in Abbildung 5.28 die Werte der experimentell bestimmten Abscheideeffizienz des Modellkühlers für $T_G = 150\text{ °C}$ sowie $T_G = 300\text{ °C}$ dargestellt. Dabei wird unterschieden zwischen einer masse- und einer anzahlbasierten Abscheideeffizienz.

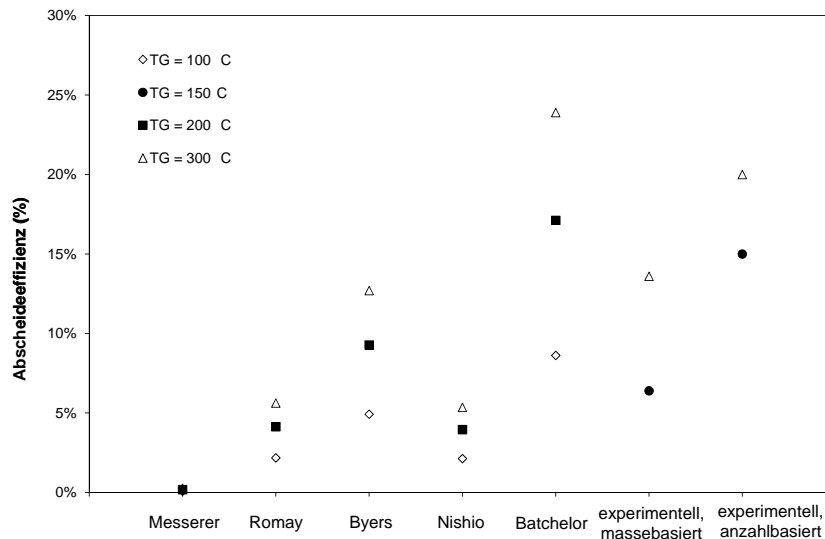


Abbildung 5.28 Thermophoretische Abscheidung für die verschiedenen Ansätze bei $T_W = 20\text{ °C}$ und $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$

Es zeigt sich, dass die Werte der massebasierten Abscheideeffizienz vergleichbar sind mit den Ergebnissen des Ansatzes nach Byers und Calvert. Die anzahlbasierte Abscheideeffizienz dagegen zeigt etwas höhere Werte bei sonst gleichen Bedingungen und ist besser mit dem Ansatz von Batchelor und Shen vergleichbar. Dies bedeutet, dass bei der Berechnung der thermophoretischen Abscheideeffizienz mit den in der Literatur zu findenden Ansätzen, darauf zu achten ist, ob eine masse- oder anzahlbasierte Abscheideeffizienz betrachtet werden soll.

5.12 Berechnung Diffusiophorese

5.13 Berechnung mittels Kondensatmassenstrom

Die wichtigste Größe bei der Berechnung der diffusiophoretischen Geschwindigkeit nach Muñoz-Cobo et al. [174] ist der Kondensatmassenstrom $\dot{m}_{\text{Kondensat}}$. Da dieser unbekannt war, wurde zunächst mit den in Kapitel 4.4.2 beschriebenen Gleichungen der Wassergehalt im Abgas bestimmt, der unter verschiedenen Bedingungen mindestens notwendig ist, um eine Kondensation herbei zu führen.

Dieser minimale Wassergehalt im Abgas ist in Abbildung 5.29 in Abhängigkeit der Abgastemperatur für je zwei verschiedene Wandtemperaturen und Drücke dargestellt. Besonders deutlich erkennbar ist die Druckabhängigkeit der Kondensation bei einer Wandtemperatur von 80 °C. Die Kondensation ist dabei unabhängig vom Gesamtmassenstrom.

Die Ergebnisse zeigen, dass bei einer niedrigen Wandtemperatur der im Dieselabgas normal vorhandene Wasserdampfgehalt bereits ausreichend ist (unabhängig von Druck und Gastemperatur), um im Kühler Kondensation herbei zu führen. Bei hohen Wandtemperaturen sind für das Erreichen der Kondensation dagegen hohe Drücke notwendig. Grundsätzlich wird Kondensation durch eine niedrige Gastemperatur begünstigt.

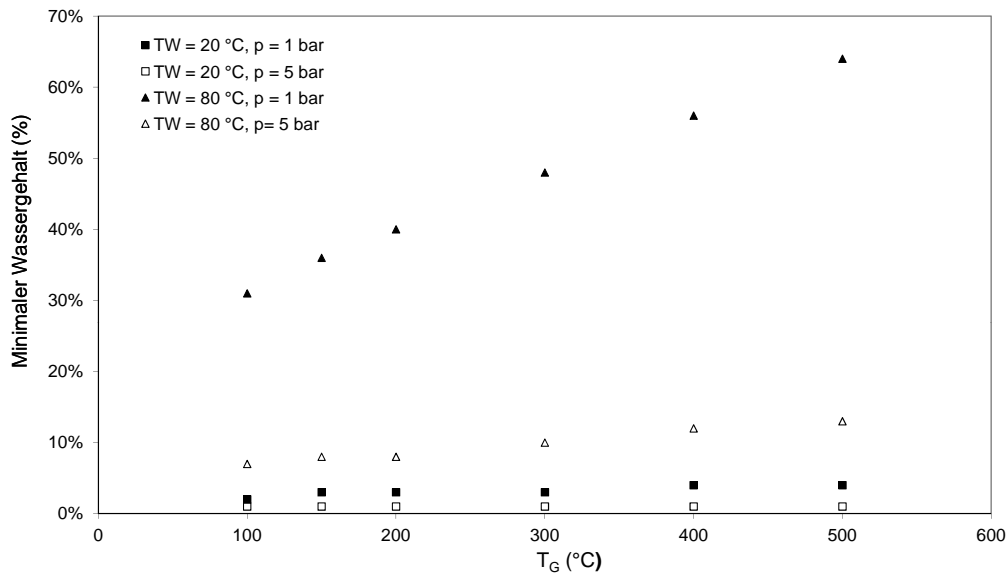


Abbildung 5.29 Minimaler Wassergehalt im Abgas, der unter gegebenen Bedingungen zu Kondensation führt

Anschließend wurde die diffusiophoretische Geschwindigkeit nach Muñoz-Cobo et al. [174] für die verschiedenen Wassergehalte betrachtet und der Wassergehalt bestimmt, der nötig ist, damit die im Abgas enthaltenen Rußpartikel allein durch Diffusiophorese abgeschieden werden. Die notwendige Betrachtung erfolgte dabei wieder über die charakteristische Ablagerungszeit τ im Verhältnis zur Verweilzeit des Gases bzw. der Partikel im Kühler.

Tabelle 5.9 zeigt beispielhaft die Ergebnisse für den Mindestgehalt an Wasserdampf im Abgas, um Partikel allein durch Diffusiophorese abscheiden zu können. Berücksichtigt wurden dabei neben den Gas- und Wandtemperaturen auch verschiedene Drücke und Gasmassenströme. Die Werte für den Wasserdampfgehalt werden teilweise extrem groß und liegen deutlich über den für Dieselabgas üblichen Mengen (vgl. Tabelle 2.2). Aus diesen Beobachtungen wurde gefolgert, dass die im Modellkühler durch Wasserdampfkondensation induzierte Diffusiophorese bei den betrachteten Bedingungen nicht allein für Partikelablagerung verantwortlich sein kann.

Allerdings muss an dieser Stelle betont werden, dass allein Diffusiophorese durch Wasserdampfkondensation betrachtet wurde, es fehlt die Kopplung des Einflusses der Thermophorese, die auch ohne Kondensation wirkt, sowie der Kondensation von HC und Schwefelsäure. Während der durchgeführten Verschmutzungsversuche wurde die größte Abscheideeffizienz beobachtet, wenn zusätzlich zum Wasserdampf auch HC und H₂SO₄ im Aerosol vorhanden waren.

Tabelle 5.9 Minimaler Wassergehalt im Abgas, der benötigt wird, damit bei den betrachteten Bedingungen die Partikel allein durch Diffusiophorese abgeschieden werden (\dot{m}_{ges} : a : 1 kg h⁻¹, b : 5 kg h⁻¹, c : 10 kg h⁻¹, d : 15 kg h⁻¹)

T_G (°C)	T_W (°C)	p (bar)	$x_{g,H_2O,min}$ (%) ^a	$x_{g,H_2O,min}$ (%) ^b	$x_{g,H_2O,min}$ (%) ^c	$x_{g,H_2O,min}$ (%) ^d
100	20	1	8	10	12	12
	20	5	7	9	10	11
	80	1		39		
	80	5		14		
150	20	1	8	10	12	12
	20	5	7	9	10	11
	80	1		43		
	80	5		15		
200	20	1	8	10	12	12
	20	5	6	9	10	10
	80	1		46		
	80	5		16		
300	20	1	9	11	12	13
	20	5	6	8	9	10
	80	1		54		
	80	5		17		
400	20	1	9	11	12	13
	20	5	6	8	9	10
	80	1		62		
	80	5		18		
500	20	1	9	11	12	13
	20	5	6	8	9	10
	80	1		70		
	80	5		20		

5.13.1 Berechnung mittels Dampfdruckgradient

Um die Ergebnisse der Berechnung mit der experimentell bestimmten Abscheideeffizienz vergleichen zu können, wurde die Abscheideeffizienz der Diffusiophorese nach Gleichung 4.34 bestimmt, da der Kondensatmassenstrom nur unzureichend experimentell bestimmt wurde. Aus der verwendeten Gleichung wird ersichtlich, dass der Dampfdruckgradient und damit die Wirkung der Diffusiophorese, ebenso wie die Thermophorese, stark abhängig von den im Kühler herrschenden Temperaturbedingungen sind. Bei Verwendung eines linearen Temperaturgradienten ergibt sich ein exponentieller Verlauf des Dampfdruckgradienten. Dieser führt dazu, dass diejenigen Partikel, die mit dem größten Abstand zur Wand in den Kühler eintreten, eine unrealistisch hohe Abscheideeffizienz ($E > 1000\%$) aufweisen. Es wird erwartet, dass die Partikel mit dem größten Abstand zur Wand auch die längste Zeit benötigen, um abgeschieden zu werden. Der Dampfdruckgradient nimmt aber aufgrund seines Verlaufs an dieser Stelle so hohe Werte an, dass v_{DP} ebenfalls sehr groß wird. Somit entsteht der Eindruck, als könnten diese Partikel bevorzugt abgelagert werden.

In Tabelle 5.10 sind beispielhaft ausgewählte berechnete diffusiophoretische Abscheideeffizienzen unter verschiedenen Bedingungen zusammengefasst, um den Einfluss einzelner Parameter zu verdeutlichen. So wird ersichtlich, dass bei konstanter Wandtemperatur mit zunehmender Gastemperatur E stark ansteigt. Dieser Effekt ist der starken Abhängigkeit des Dampfdruckgradienten von der Gastemperatur zuzuschreiben. Allerdings konnte dieser Einfluss bei den experimentellen Untersuchungen weder bestätigt noch widerlegt werden. Mit Erhöhung des Wassergehalts im Abgas erhöht sich auch die Abscheideeffizienz, unabhängig von der Gastemperatur. Durch Erhöhung des Gasmassenstroms kann der Einfluss der Diffusiophorese drastisch reduziert werden, da die Verweilzeit der Partikel im Kühler genauso wie bei der Thermophorese verringert wird. Einen weniger starken, aber dennoch merklichen Einfluss auf die Wirkung der Diffusiophorese hat nach dieser Berechnung eine Änderung des Drucks. So wird durch eine Erhöhung des Drucks die Abscheideeffizienz deutlich reduziert (vgl. Tabelle 5.11). Diese Ergebnisse stehen im krassen Gegensatz zu der Tatsache, dass Kondensation normalerweise durch niedrige Gas- und Wandtemperaturen oder hohe Drücke gefördert wird, sind aber eine Folge der

Verwendung des exponentiellen Dampfdruckgradienten. Eine genauere Beschreibung des Dampfdruckgradienten im betrachteten System wird daher an dieser Stelle dringend empfohlen.

Tabelle 5.10 Diffusiophoretische Abscheideeffizienz E (Wasserdampf) bei $p_{ges} = 1 \text{ bar} = \text{konstant}$. Oben: $\dot{m}_G = 1 \text{ kg h}^{-1}$. Unten: $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$

\dot{m}_{ges} (kg h^{-1})	H (m)	E		E	
		$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 1\%$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 1\%$	$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 10\%$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 10\%$
1	0,00001	400 %	1133 %	489 %	1700 %
	0,00005	86 %	283 %	102 %	340 %
	0,0005	16 %	117 %	19 %	142 %
	0,005	71 %	3400 %	85 %	3400 %
15	0,00001	27 %	67 %	33 %	100 %
	0,00005	6 %	17 %	7 %	20 %
	0,0005	1 %	6 %	1 %	8 %
	0,005	5 %	200 %	6 %	200 %

Tabelle 5.11 Diffusiophoretische Abscheideeffizienz E (Wasserdampf) bei $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1} = \text{konstant}$. Oben: $p_{ges} = 1 \text{ bar}$. Unten: $p_{ges} = 10 \text{ bar}$

p_{ges} (bar)	H (m)	E		E	
		$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 1\%$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 1\%$	$T_G = 150^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 10\%$	$T_G = 350^\circ\text{C}$ $T_W = 20^\circ\text{C}$ $x_{g,H_2O} = 10\%$
1	0,00001	82 %	233 %	100 %	350 %
	0,00005	18 %	58 %	21 %	70 %
	0,0005	3 %	24 %	4 %	29 %
	0,005	15 %	700 %	17 %	700 %
10	0,00001	8 %	26 %	10 %	31 %
	0,00005	2 %	6 %	2 %	7 %
	0,0005	0 %	2 %	0 %	3 %
	0,005	1 %	63 %	2 %	75 %

5.13.2 Berechnung der Abscheidewahrscheinlichkeit in Anwesenheit von Schwefelsäure

Unter den getroffenen Annahmen ergab sich für die betrachteten Schwefelsäurekonzentrationen, die zwischen 0,01 ppm und 20 ppm lagen, eine Abscheidewahrscheinlichkeit von 0 %, d.h. auch hier wird deutlich (im Vergleich zu den Messergebnissen), dass Säure allein nicht Ablagerungsfördernd wirkt. Da jedoch im Abgas immer eine gewisse Menge Wasserdampf enthalten ist, muss davon ausgegangen werden, dass die Kombination der Komponenten die Ablagerungsbildung doch verstärken kann.

6 ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Einflussgrößen, die für die Belagbildung im AGR-Kühler von Bedeutung sind, im Detail herausgearbeitet. Dazu wurden umfangreiche Versuchsreihen auf einem Modellprüfstand, der die Nachbildung eines realen Dieselabgases unabhängig von einem Verbrennungsmotor erlaubt, durchgeführt. Verschiedene Parameter wurden variiert und bewertet. Um weitere Informationen über die Schichtdicke der entstandenen Ablagerungen zu erhalten, wurden diese mit Hilfe von Neutronenradiographie orts aufgelöst ermittelt. Zusätzlich wurde der Kohlenstoff-, Calcium- sowie Sulfatgehalt der Ablagerungen bestimmt.

Die Ablagerungsversuche zeigten, dass Thermophorese bei weitem nicht der einzige wirkende und wohl auch nicht dominierende Mechanismus ist, der im Wärmetauscher zum Aufbau einer isolierenden Ablagerungsschicht führt. Zusammen mit den Ergebnissen zur Ablagerungszusammensetzung zeigte sich ein dominierender Einfluss der Kondensation bei der Kühlerverschmutzung. Das Auftreten große Temperaturunterschiede im Kühler und die Anwesenheit kondensierbarer Komponenten, vor allem von Kohlenwasserstoffen, verstärkte die Ablagerungsbildung. Mit abnehmender Kühlwassertemperatur nahm die Kondensation im Kühler zu. Kondensation von Wasser führte zu einem Auswasch- und Reinigungseffekt. Die Kondensation von HC und Schwefelsäure führte jedoch zu vermehrter Ablagerungsbildung, da sich eine klebrige Grundschicht ausgebildet hat. Außerdem ist davon auszugehen, dass der durch die Kondensation entstehende Konzentrationsgradient zusätzlich die Partikelablagerung begünstigt (Diffusiophorese). Es wurde deutlich, dass die Anwesenheit von Säure in geringen Konzentrationen (< 1 ppm) nicht allein verantwortlich für einen Anstieg der Abscheideeffizienz ist. Ein genereller Einfluss der Säure, gerade in hohen Konzentrationen, die bei verschiedenen Großmotoren auftreten, kann jedoch nicht ausgeschlossen werden.

Die beobachtete Ablagerungsmasse war unabhängig von der Gastemperatur. Durch eine höhere Gastemperatur wurde die Kondensationsneigung reduziert, jedoch stieg der Einfluss des thermophoretischen Effekts an. Mit zunehmender Kühlwassertemperatur verringerte sich die Ablagerungsmenge, da der Kondensationseffekt wegfiel oder zumindest weniger stark ausgeprägt war. Die Ablagerungsbildung war zeitabhängig, das heißt, je länger der Kühler betrieben wurde, desto mehr Ablagerungen wurden gebildet. Dieser Effekt wurde auch durch die Neutronenradiographie bestätigt. Allerdings können Auswascheffekte für eine Stabilisierung oder sogar Reduzierung der Ablagerungsbildung sorgen.

Die Bestimmung der partikelgrößen- und orts aufgelösten Abscheideeffizienz zeigte deutlich, dass im Kühlerrohr selbst die Ablagerung bedingt durch Thermophorese und Strömungseffekte sehr klein ist. Bei ausreichend großen Partikelkonzentrationen können jedoch bereits sehr geringe prozentuale Effekte zu einer deutlichen Ablagerungsbildung führen. Zudem wirken sich Thermophorese und Strömungseffekte deutlich auf die Ablagerungsbildung in den Querschnittsveränderungen des Kühlers aus. Die Ablagerung von Rußpartikeln im Kühleintrittsbereich darf daher nicht vernachlässigt werden. Sowohl geometrische Effekte können hierbei eine Rolle spielen, als auch die Möglichkeit der Ausbildung eines Temperaturgradienten im eigentlich noch nicht gekühlten Bereich des Wärmetauschers.

Die durchgeführten Untersuchungen zeigen, dass die bereits umfassend beschriebenen Mechanismen Diffusion, Thermophorese, Impaktion sowie Interzeption wie erwartet einen Beitrag zur Ablagerungsbildung im AGR-Kühler leisten. Jedoch muss davon ausgegangen werden, dass der bei der Versottung dominierende Mechanismus die Diffusiophorese ist.

Zudem wurden für unterschiedlichste Bedingungen rechnerisch Diffusion, Thermophorese und Diffusiophorese für einen Modellkühler detailliert betrachtet. Daraus konnte eine Aussage über die Abscheideeffizienz der beteiligten Mechanismen getroffen werden.

Aufgrund fehlender Ansätze für das Verhalten der Versottungsmechanismen unter Realabgas mussten idealisierte Bedingungen angenommen werden, zu denen z.B.

reine Luft als Trägermedium der Partikel zählt. Trotzdem konnten Abschätzungen erfolgen, die Rückschlüsse auf Versottungsbedingungen zulassen.

Je stärker der Temperaturgradient ∇T im Kühler ausgeprägt ist, desto stärker trägt die Thermophorese im Kühler zur Partikelabscheidung bei. Eine Erhöhung des Gasmassenstromes im Kühler kann den Effekt der Thermophorese reduzieren, da die Verweilzeit der Partikel im Kühler erheblich reduziert wird, wodurch sich die Wirkung der Thermophorese nicht voll entfalten kann. Bei Annahme eines linearen Temperaturprofils ist die thermophoretische Geschwindigkeit konstant, unabhängig vom Abstand des Partikels zur Wand. Daher ist es in diesem Fall von Vorteil, wenn die Partikel den Kühler mit möglichst großem Abstand zur Wand betreten. Da aber normalerweise die Rußpartikel homogen im Abgas verteilt sind, werden diejenigen Partikel, die sich nahe genug an der Wand befinden (Grenzschicht) durch Thermophorese abgeschieden.

Bei Betrachtung der Diffusiophorese über den Kondensatmassenstrom wird deutlich, dass sie stärker wirkt, je mehr Kondensat gebildet werden kann. Bei der Betrachtung über den Dampfdruckgradient zeigt sich jedoch, dass Diffusiophorese auch stark an den Temperaturgradienten gekoppelt ist. Der Dampfdruckgradient ist eine Funktion der Temperatur, d.h. mit zunehmendem Temperaturgradienten nimmt auch der Einfluss der Diffusiophorese zu. Gerade im Anwendungsfall Abgaswärmetauscher muss davon ausgegangen werden, dass die Diffusiophorese nicht allein wirkt, da immer ein Temperaturgradient vorhanden ist und somit auch Thermophorese die Ablagerungsbildung fördert.

Eine Korrelation der Modellierung mit den Ergebnissen der Experimente war an dieser Stelle nicht möglich, da die Messwerte aufgrund ihrer starken Streuung keine korrekten Aussagen zuließen.

Auf Grundlage der durchgeführten Berechnungen und Versuche können folgende Empfehlungen für die Kühlerauslegung sowie den Kühlerbetrieb zur Reduktion der Ablagerungsbildung abgeleitet werden:

- Zur Vermeidung von Ablagerung durch Diffusion ist eine Kühlergeometrie mit großem Rohrquerschnitt von Vorteil. Auch hohe Strömungsgeschwindigkeiten

reduzieren den Einfluss dieses Mechanismus. Die Verweilzeit der Partikel im Kühler wird durch diese beiden Maßnahmen reduziert, dadurch verringert sich die Wahrscheinlichkeit der Abscheidung auf der Kühlerwand.

- Impaktion von Partikeln lässt sich am besten vermeiden, indem die Geometrie des Kühlers so gestaltet wird, dass keine Strömungshindernisse und abrupte Strömungsumlenkungen auftreten. Gerade in dem Bereich, in dem das Gas in den Kühler eintritt, ist dies von entscheidender Bedeutung, wie durch die vorgestellten Messungen gezeigt werden konnte. Zudem muss Stagnation des Gases im Bereich der AGR-Strecke vermieden werden. Bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten erhalten die Partikel sonst die Gelegenheit durch Agglomeration anzuwachsen.
- Zur Reduktion der Thermophorese muss darauf geachtet werden, dass der Temperaturgradient im Kühler nicht zu stark ausgeprägt ist. Da dies jedoch dem Sinn und Zweck des AGR-Kühlers widerspricht, muss ein Kompromiss zwischen Kühlleistung und Verhinderung von Fouling gefunden werden. Durch einen großen Rohrquerschnitt sowie große Strömungsgeschwindigkeiten kann der Einfluss der Thermophorese auch bei großen Temperaturgradienten etwas vermindert werden, da bei diesem Mechanismus die Verweilzeit der Partikel im Kühler von großem Einfluss ist.
- Diffusiophorese lässt sich am einfachsten vermeiden durch Wahl von Betriebsbedingungen, unter welchen keine Kondensation der im Abgas enthaltenen DampfkompONENTEN auftritt. Dies wird vor allem durch hohe Wandtemperaturen erreicht. Ähnlich wie bei der Thermophorese ist ein reduzierter Temperaturgradient von Vorteil bei der Vermeidung der Kühlerverschmutzung.

Zudem muss die Möglichkeit in Betracht gezogen werden, auch die Hochdruck-AGR mit einem Partikelfilter oder Oxidationskatalysator zu kombinieren. Eine Verschmutzung der Kühler wird sich aufgrund der beschriebenen Mechanismen nur vermeiden lassen, wenn das zu kühlende Gas keine Bestandteile enthält, die abgelagert werden können.

7 ANHANG

7.1 Abkürzungen und Symbole

Abkürzungen

AEM	Aerosolelektrometer
AGR	Abgasrückführung
ANTARES	advanced neutron tomography and radiography experimental system
EGR	exhaust gas recirculation
CAST	combustion aerosol standard
CCD	charged coupled device
CNC	Kondensationskernzähler
CRT	continuously regenerating trap
DMA	Differential Mobility Analyzer
DOC	diesel oxidation catalyst
DPF	Dieselpartikelfilter
EC	Elementarer Kohlenstoff
FCE	Faraday–Cup–Elektrometer
FWHM	Halbwertsbreite
GfG	Graphitfunken-Generator
HC	Kohlenwasserstoffe
LVK	Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen
Nfz	Nutzfahrzeug
OC	Organischer Kohlenstoff
PAK	polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe

Pkw	Personenkraftwagen
PM	particulate matter
ppm	parts per million
SCR	selective catalytic reduction
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
SOF	löslicher organischer Kohlenwasserstoff
TC	Totaler Kohlenstoff

Lateinische Symbole

A	(Querschnitts)Fläche	m^2
c	Konzentration	kg m^{-3}
c	Partikelkonzentration	cm^{-3}
\bar{c}	Mittlere Geschwindigkeit eines Gasmoleküls	m s^{-1}
c_p	isobare spezifische Wärmekapazität	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
C_C	Cunningham-Korrekturfaktor	-
d	Schichtdicke	m
d_c	charakteristische Abmessung einer Strömungsumlenkung	m
d_m	elektrischer Mobilitätsdurchmesser	m
d_p	Partikeldurchmesser	m
D_{12}	Diffusionskoeffizient für Gas 1 in Gas 2	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
D_p	Diffusionskoeffizient für Partikel in Luft	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
\vec{E}	elektrische Feldstärke	V m^{-1}
\vec{F}	Kraft	N
f	Reibungsbeiwert	-
H	Abstand zur Kühlerwand	m
I	Intensität	W m^{-2}
\vec{j}_{diff}	Partikelfluss aufgrund von Diffusion	$\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$
K_{th}	thermophoretischer Koeffizient	-
L	(Rohr)Länge	m
m	(Molekül)Masse	kg
\dot{m}	Massenstrom	kg s^{-1}

M	Molmasse	kg mol^{-1}
n	Anzahl	-
p	Druck	bar, Pa
P	Penetration	-
p_{sat}	Sättigungsdampfdruck	mbar
q	Massenstromdichte	$\text{kg s}^{-1} \text{ m}^{-2}$
r	Radius	m
R	elektrischer Widerstand	Ω
t	Zeit	s
T	Transmission	-
T	Temperatur	$^{\circ}\text{C}$, K
T_b	Siedetemperatur	K
T_C	kritische Temperatur	K
\bar{T}	mittlere Temperatur	K
ΔT_{log}	mittlere logarithmische Temperaturdifferenz	K
U	Spannung	V
v	Geschwindigkeit	m s^{-1}
v_{DP}	diffusiophoretische Geschwindigkeit	m s^{-1}
v_{el}	Ablagerungsgeschwindigkeit im elektrischen Feld	m s^{-1}
v_m	mittlere Strömungsgeschwindigkeit	m s^{-1}
v_{th}	thermophoretische Geschwindigkeit	m s^{-1}
v_s	Sinkgeschwindigkeit im Gravitationsfeld	m s^{-1}
$v_{x,0}$	Gasgeschwindigkeit in axialer Richtung	m s^{-1}
V	Volumen	m^3
\dot{V}	Volumenstrom	$\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$
V_C	kritisches Volumen	cm^3
x	Position in axialer Richtung	mm
x	Molanteil	mol mol^{-1}
x_g	Massenanteil	kg kg^{-1}
Z_p	elektrische Mobilität eines Partikels	$\text{m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$

Griechische Symbole

α	konvektiver Wärmeübergangskoeffizient	$\text{W m}^{-2}\text{K}^{-1}$
Δ	Differenz	-
ϵ	Abscheideeffizienz	-
ϵ_{12}	stoffspezifische Konstante	J
E	theoretische Abscheideeffizienz	-
η	dynamische Viskosität	Pa s
λ	mittlere freie Weglänge	m
λ	Wärmeleitfähigkeit	$\text{W m}^{-1}\text{K}^{-1}$
λ	Wellenlänge	nm
μ	Schwächungskoeffizient	m^{-1}
ν	kinematische Viskosität	m^2s^{-1}
ρ	Dichte	kg m^{-3}
σ_{12}	stoffspezifische Konstante	Å
σ_g	geometrische Standardabweichung	-
τ	Verweilzeit	s
ξ	Abscheideparameter	-
$\Omega(T_{12}^*)$	Lennard–Jones–Potenzial	-
∇	Gradient	-

Dimensionslose Kennzahlen

Kn	Knudsen- Zahl
Nu	Nusselt-Zahl
Pr	Prandtl-Zahl
Re	Reynolds-Zahl
Sc	Schmidt-Zahl
Sh	Sherwood-Zahl
Stk	Stokes-Zahl

Konstanten

e_0	Elementarladung	$1,601 \cdot 10^{-19} \text{ A s}$
\vec{g}	Erdbeschleunigung	$9,81 \text{ m s}^{-2}$
k_B	Boltzmann-Konstante	$1,3802 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
R	allgemeine Gaskonstante	$8,314 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$

Indizes

0	Initialzustand
a	außen
aus	Austritt
Alu	Aluminium
c	kalt
D	Dampf
diff	Diffusion
DP	Diffusiophorese
ein	Eintritt
G	Gas
ges	gesamt
h	heiß
i	innen
iso	isotherm
KW	Kühlwasser
max	maximal
median	Median
p	Partikel
R	Ruß
th	thermophoretisch
theo	theoretisch
TP	Thermophorese
W	Wand

7.2 Geräteverzeichnis

Modellgasprüfstand

A/D Wandler USB - 2416 - 4AO (Measurement Computing, USA)
Aerosolelektrometer (IWC, Deutschland)
Anschlusskabel EWF 124 PUR 4x034L0200 50 (Hirschmann, Deutschland)
Coulometer Coulomat 702 DR/C (Ströhlein, Deutschland)
Differentieller Mobilitätsanalysator DMA 3071 (TSI, USA)
Druckmesser CTE7007GY7 (Sensortech, Deutschland)
Flammenphotometer Elex 6361 (Eppendorf, Deutschland)
Funkenrußgenerator GfG 1000 (Palas GmbH, Deutschland)
Hochtemperatur-Heizschnüre HSQ (Hillesheim AG, Deutschland)
Ionenchromatograph IC 25, Leitfähigkeitsdetektor (mit Suppression) und Anionen-Trennsäule AS9 (mit Vorsäule) (Dionex, USA)
Kompakt-Heizregler HT 40 (Hillesheim AG, Deutschland)
Kondensationskernzähler CPC 3025 (TSI, USA)
Kondensationskernzähler CNC 3020 (TSI, USA)
Massendurchflussmesser red-y smart meter GSM (Vögtlin Instruments AG, Schweiz)
Ofen 1200°C Vertical Chamber Furnace (Carbolite, GB)
Scanning Mobility Particle Sizer SMPS (TSI, USA)
Steuersoftware Aerosol Instrument Manager (TSI, USA)
Thermoelemente Typ HKMTSS-IM150U-150 (Newport Omega, Deutschland)
Thermostat Haake K20/DC1 (Thermo Haake GmbH, Deutschland)
Verdünnungsstufe VKL 10 (Palas GmbH, Deutschland)

Raman-Mikroskop

Auswertesoftware Wire 1.2 (Renishaw, UK)
CCD-Camera YC-05II (Leica, Deutschland)
Lichtmikroskop DMLM (Leica, Deutschland)

Raman-Mikroskop Renishaw 2000 (Renishaw, UK)

Steuersoftware Grams 32 (Termo Galactic, USA)

Sonstige Geräte

Filterhalter (IWC, Deutschland)

Laborwaage Kern 770 (Kern & Sohn GmbH, Deutschland)

Muffelofen MR 170 E (Heraeus, Deutschland)

Nadelventile (SvageLock, Deutschland, HPS, Deutschland)

Pumpe VCA 40 (01) (Rietschle, Deutschland)

Reinstwasseranlage Milli-Q-Plus 185 (Millipore, USA)

Rotameter (Rota Yokogawa, Deutschland)

Schlauchpumpe MS-Reglo (Ismatec SA, Schweiz)

Ultraschallbad Sonorex RRK 510S (Bandelin, Deutschland)

Volumenstrommesser Gilibrator (Gillian, USA)

7.3 Chemikalienverzeichnis

Aceton (>99,5% CarlRoth, Deutschland)

Argon (Reinheit 4.6, Air Liquide, Deutschland)

Bariumcarbonat (p.a., Merck, Deutschland)

Bariumperchlorat (p.a., Merck, Deutschland)

1-Butanol (> 99,5%, CarlRoth, Deutschland)

Ca-Standard (1000 mg L⁻¹, Merck, Deutschland)

Citronensäure-Monohydrat (reinst, Merck, Deutschland)

Dieselmotoren B7 (EN 590, Montana, Deutschland)

n-Dodecan (> 90%, Sigma-Aldrich, Deutschland)

Druckluft (Hausleitung)

Glycoshell Konzentrat longlife (Shell, Deutschland)

Glycantin (BASF, Deutschland)

Graphitelektroden (99,9994% C, Alfa Aesar, USA)

n-Hexadecan (99%, Sigma-Aldrich, Deutschland)
Kupfer(II)-Oxid gekörnt (p.a., Merck, Deutschland)
Natronkalk mit Indikator (p.a., Merck, Deutschland)
Perhydrit (Merck, Deutschland)
Platinnetz (Ströhlein, Deutschland)
Propangas (Götz GmbH, Deutschland)
2-Propanol (>99,5%, CarlRoth, Deutschland)
2-Propanol (LC-MS Chromasolv, Fluka, Deutschland)
Sauerstoff (Reinheit 4.8, Air Liquide, Deutschland)
Schwefelsäure H₂SO₄ (97%, Sigma-Aldrich, Deutschland)
Silberwolle (Ströhlein, Deutschland)
Silicagel orange (CarlRoth, Deutschland)
Stickstoff (Hausleitung)
Toluol (Chromasolv, Sigma-Aldrich, Deutschland)

Sonstige Materialien

Glasfaserfilter, bindemittelfrei (Machery & Nagel, Deutschland)
Nucleporefilter (Nuclepore, USA)
Quarzfaserfilter QR-100 (Advantec, Deutschland)
Schlauchmaterial Tygon R3603 (CarlRoth, Deutschland)
Schlauchpumpe MS-Reglo (Ismatec SA, Schweiz)
Schlauch für Schlauchpumpe Tygon 3-stop ($d_i = 0,19$ mm (orange/rot), $d_i = 1,85$ mm (grün/grün) Cole Parmer, USA)
Spritzenfilter steril, 0,22µm (CarlRoth, Deutschland)

8 ABBILDUNGSVERZEICHNIS

2.1	Rußbildung nach der Acetylenhypothese	6
2.2	Rußbildung nach der Elementarkohlenstoffhypothese	7
2.3	Prinzip der Abgasrückführung (Hochdruck-AGR)	14
2.4	Diffusionsbedingte Partikelabscheidung im durchströmten Rohr	19
2.5	Einfluss der Schwerkraft auf die Partikelbewegung	20
2.6	Schematische Darstellung der Diffusiophorese	23
2.7	Partikelbahn aufgrund des bestehenden Temperaturgradienten	24
2.8	Abscheidung eines Partikels aufgrund von Impaktion	26
2.9	Abscheidung eines Partikels aufgrund von Interzeption	26
3.1	Schema Prüfstands Aufbau	31
3.2	Querschnitt durch den Modellkühler	32
3.3	Graphitfunken-Generator	34
3.4	Schema Propanbrenner	34
3.5	Probenahmesonde	35
3.6	Schema für die Zugabe von Schwefelsäure und HC	39
3.7	Schema der Entnahmeeinrichtung für die Probensammlung	40
3.8	Schematischer Aufbau des Coulomat 702	41
3.9	Schematischer Aufbau des Raman-Mikroskops RENISHAW 2000	45
3.10	Aufbau und Messprinzip von ANTARES	47
3.11	Erläuterung zur abschnittswisen Definition der durchstrahlten Schichtdicken	49
3.12	Schema für die Bestimmung des Kondensatmassenstroms	50
3.13	Typische Größenverteilung von Realruß sowie ausgewählte monodisperse Partikelgrößen	54
3.14	Querschnitt durch den Modellwärmetauscher	56

4.1	Definition des Koordinatensystems und Beschreibung des betrachteten Systems	59
4.2	Übergang Rohrquerschnitt - gerade Wand	61
5.1	Typische Größenverteilungen für Realruß (verschiedene Motorbetriebspunkte), Graphitfunkenruß und Flammruß	77
5.2	Vergleich der Raman-Spektren von Real- und Flammruß	81
5.3	Schichtdickenverlauf in einem durchgehend verschmutzten Rohr. Strömungsrichtung von links nach rechts.	82
5.4	Schichtdickenverlauf bei beobachteter Auswaschung der Ablagerungsschicht. Strömungsrichtung von links nach rechts.	83
5.5	Verlauf der Schichtdicken zu verschiedenen Zeitpunkten bei konstantem Abgasmassenstrom (9 kg h^{-1})	84
5.6	Partikelgrößenabhängige Abscheideeffizienz $\epsilon(d_m)$ für isotherme Bedingungen und Variation der Kühlwassertemperatur bei konstanter Gastemperatur $T_G = 300^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$	90
5.7	Größenabhängige Abscheideeffizienz für verschiedene Temperaturbedingungen und Gasmassenströme	91
5.8	Abscheidung im Kühlereintritt zwischen $x = 0 \text{ mm}$ und $x = 88 \text{ mm}$	92
5.9	Abscheideeffizienz im Kühlereintritt bei unterschiedlichen Gastemperaturen, Ruß ohne Zusätze	93
5.10	Abscheideeffizienz im Kühlereintritt, Vergleich von Rußaerosol und Ruß-Schwefelsäure-Aerosol bei $T_G = 150^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$	93
5.11	Abscheideeffizienz im Kühlereintritt, Vergleich von Rußaerosol und Ruß-Schwefelsäure-Aerosol bei $T_G = 150^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$	94
5.12	Abscheideeffizienz, orts aufgelöste Messung für Partikel mit $d_m = 25,6 \text{ nm}$	95
5.13	Vergleich Abscheideeffizienzen von Rußaerosol ohne Zusätze und Rußaerosol mit 1 ppm Schwefelsäure zugesetzt ($x = 173 \text{ mm}$).	96
5.14	Vergleich der Abscheideeffizienzen über die gesamte Kühlerlänge. Oben: Ruß ohne Zusätze. Unten: Ruß mit 1 ppm Schwefelsäure	97
5.15	Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $n = 3$. $T_G = 150^\circ\text{C}$, $T_{KW} = 20^\circ\text{C}$, $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1}$	99

5.16	Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $n = 3$. $T_G = 150\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$	99
5.17	Ergebnisse zweier Versuche zur Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$	100
5.18	Ergebnisse zweier Versuche zur Abscheideeffizienz in Abhängigkeit vom Messort für drei Partikelgrößen bei Zugabe von Dodecan. $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$, $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$	101
5.19	Vergleich der Abscheideeffizienz einiger ausgewählter Partikelgrößen bei verschiedenen Bedingungen. Messung über gesamte Kühlerlänge .	102
5.20	Kondensatbildung. Links: $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$. Rechts: $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 80\text{ °C}$	104
5.21	Links: Struktur des n -Dodecan-Kondensats (bei $T_G = 300\text{ °C}$, $T_{KW} = 20\text{ °C}$). Rechts: Rußablagerungen am realen Motor bei unterschiedlichen Wandtemperaturen	104
5.22	Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$	105
5.23	Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 10\text{ kg h}^{-1}$	106
5.24	Abscheideeffizienz bei Diffusion, verschiedenen Temperaturen und $\dot{m}_G = 15\text{ kg h}^{-1}$	106
5.25	Änderung der thermophoretischen Geschwindigkeit mit abnehmender Wandtemperatur bei gleichbleibender Gastemperatur .	107
5.26	Änderung der thermophoretischen Geschwindigkeit mit zunehmender Gastemperatur bei gleichbleibender Wandtemperatur .	108
5.27	Zunahme Abscheideeffizienz mit Abnahme des Abstandes zur Wand .	110
5.28	Thermophoretische Abscheidung für die verschiedenen Ansätze bei $T_W = 20\text{ °C}$ und $\dot{m}_G = 5\text{ kg h}^{-1}$	111
5.29	Minimaler Wassergehalt im Abgas, der unter gegebenen Bedingungen zu Kondensation führt	113

9 TABELLENVERZEICHNIS

2.1 Emissionsgrenzwerte für Dieselfahrzeuge	4
2.2 Zusammensetzung von Dieselaabgas	5
3.1 Eigenschaften ANTARES [155]	47
3.2 Abschnittsweise Definitionen der durchstrahlten Schichtdicken	48
3.3 Übersicht Fitparameter	49
3.4 Übersicht Betriebsbedingungen Ablagerungsversuche	52
4.1 Stoffspezifische Konstanten (aus [169])	67
4.2 Konstanten für Berechnung des Sättigungsdampfdrucks	71
4.3 Koeffizienten der Antoine-Gleichung	72
4.4 Parameter für die durchgeführten Berechnungen	75
5.1 Partikelanzahlkonzentrationen	76
5.2 Zusammensetzung der auf Filtern gesammelten Rußproben	78
5.3 Zusammensetzung der Rußablagerungen im Modellkühler	79
5.4 Zusammensetzung der Rußablagerungen im Modellkühler	80
5.5 Ergebnisse zur Bestimmung des Kondensatmassenstroms	85
5.6 Übersicht der Ergebnisse der Ablagerungsversuche	103
5.7 Thermophoretische Abscheideeffizienz bei $p_{ges} = 1 \text{ bar} = \text{konstant}$. . .	109
5.8 Thermophoretische Abscheideeffizienz bei $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1} = \text{konstant}$.	109
5.9 Minimaler Wassergehalt im Abgas	114
5.10 Diffusiophoretische Abscheideeffizienz E (Wasserdampf) bei $p_{ges} = 1 \text{ bar} = \text{konstant}$. Oben: $\dot{m}_G = 1 \text{ kg h}^{-1}$. Unten: $\dot{m}_G = 15 \text{ kg h}^{-1}$.	116
5.11 Diffusiophoretische Abscheideeffizienz E (Wasserdampf) bei $\dot{m}_G = 5 \text{ kg h}^{-1} = \text{konstant}$. Oben: $p_{ges} = 1 \text{ bar}$. Unten: $p_{ges} = 10 \text{ bar}$. . .	116

10 LITERATURVERZEICHNIS

- [1] KRAFTFAHRTBUNDESAMT: *Der Fahrzeugbestand am 1. Januar 2011*. Pressemitteilung Nr. 3/2011, 2011.
- [2] SMOLINSKA, J.: *ACEA EU Economic Report, Seite 12*, 2008.
- [3] KRAFTFAHRTBUNDESAMT: *Fahrzeugzulassungen im Dezember 2011*. Pressemitteilung Nr. 1/2012, 2012.
- [4] SUMMERS, J.C., S. VAN HOUTTE und D. PSARAS: *Simultaneous Control of Particulate and NO_x Emissions from Diesel Engines*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 10:139–156, 1996.
- [5] EITEL, J., W. KRAMER und R. LUTZ: *Abgasrückführung. Neue Abgaskühler reduzieren Emissionen von Dieselmotoren*. *Automobiltechnische Zeitschrift*, 105:856–859, 2003.
- [6] HÖRNIG, G.: *Fouling in Abgaswärmetauschern. Aufbau eines Modellprüfstands und Charakterisierung des Ruß-Abscheidevermögens der gasseitigen Oberfläche verschiedener AGR-Wärmetauscher*. Diplomarbeit, Technische Universität München, 2008.
- [7] MERKER, G.P. und G. STIESCH: *Technische Verbrennung - Motorische Verbrennung*. B. G. Teubner, Stuttgart, 1999.
- [8] BASSHUYSEN, R. VAN und F. SCHÄFER: *Handbuch Verbrennungsmotor - Grundlagen, Komponenten, Systeme, Perspektiven*. Vieweg & Teubner, Wiesbaden, 2010.

- [9] GROHE, H.: *Otto- und Dieselmotoren. Arbeitsweise, Aufbau und Berechnung von Zweitakt- und Viertakt-Verbrennungsmotoren.* Vogel, Würzburg, 2000.
- [10] RIEDEL, E.: *Anorganische Chemie.* deGruyter, Berlin, 2002.
- [11] DIETSCHKE, K.H.: *Kraftfahrtechnisches Taschenbuch.* Vieweg & Sohn Verlag, Wiesbaden, 2007.
- [12] *Verordnung 2007/715/EG. Verordnung des Europäischen Parlaments und des Rates über die Typgenehmigung von Kraftfahrzeugen hinsichtlich der Emissionen von leichten Personenkraftwagen und Nutzfahrzeugen, Europäisches Parlament, 2007.*
- [13] KNAUER, M.: *Struktur-Reaktivitäts-Korrelation von Dieseluß und Charakterisierung von PAHs und Carbonylen im Abgas von Biokraftstoffen.* Doktorarbeit, Technische Universität München, 2009.
- [14] RABL, P.: *Informationen über Abgase des Kraftfahrzeugsverkehrs.* Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, April 2003.
- [15] *Richtlinie 2003/17/EG. Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates zur Änderung der Richtlinie 98/70/EG über die Qualität von Otto- und Dieselmotoren, Europäisches Parlament, 2003.*
- [16] *<http://www.dieseln.net/standards/eu/fuel.php>
Stand: 12.01.2012.*
- [17] WACHTMEISTER, G.: *Skriptum zur Vorlesung Verbrennungsmotoren.* Technische Universität München, 2006.
- [18] ROTHENBACHER, S., A. MESSERER und G. KASPER: *Fragmentation and Bond Strength of Airborne Diesel Soot Agglomerates.* Particle and Fibre Toxicology, 5:7 Seiten, 2008.
- [19] KITTELSON, D.B., W.F. WATTS und J.P. JOHNSON: *On-road and Labora-*

- tory Evaluation of Combustion Aerosols - Part 1: Summary of Diesel Engine Results.* Journal of Aerosol Science, 37:913–930, 2006.
- [20] AMANN, C.A. und D.C. SIEGLA: *Diesel Particulates - What they are and Why.* Aerosol Science and Technology, 1:73–101, 1981.
- [21] KLINGENBERG, H., K.-H. LIES und H. WINNEKE: *Diesellabgas - Entstehung, Messung und Gesundheitsgefahren.* VDI-Fortschrittberichte Reihe 12, Nr. 172. VDI Verlag GmbH, Düsseldorf, 1992.
- [22] WARNATZ, J., U. MAAS und R. W. DIBBLE: *Verbrennung.* Springer Verlag, Berlin, 2001.
- [23] KRESTININ, A. V., M. B. KISLOV, A. V. RAEVSKII, O. I. KOLESOVA und L. N. STESIK.: *On the Mechanism of Soot Particle Formation.* Kinetics and Catalysis, 41:90–98, 2000.
- [24] ROTHE, D.: *Physikalische und chemische Charakterisierung der Rußpartikelemission von Nutzfahrzeugdieselmotoren und Methoden zur Emissionsminderung.* Doktorarbeit, Technische Universität München, 2006.
- [25] MESSERER, A.: *Rußpartikeldeposition und -oxidation in Katalysatoren für Nutzfahrzeuge; Fortschritts-Berichte VDI Reihe 3 Nr. 850.* VDI Verlag GmbH, Düsseldorf, 2006.
- [26] WENZEL, S.P.: *Modellierung der Ruß- und NO_x-Emissionen des Dieselmotors.* Doktorarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2006.
- [27] MUNACK, A., N. GROPE, Y. RUSCHEL, O. SCHRÖDER und J. KRAHL: *abschlussbericht zum Forschungsvorhaben „Messung ultrafeiner Partikel im Abgas von Dieselmotoren beim Betrieb mit Biodiesel“.* Technischer Bericht, FAL Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Technologie und Biosystemtechnik, 2007.

- [28] BECK, H.A.: *Anwendungen der Photoakustischen Spektroskopie in der Prozess- und Umweltanalytik*. Doktorarbeit, Technische Universität München, 2003.
- [29] BOCKHORN, H.: *Soot Formation during Combustion*. Springer Verlag, Berlin, 1994.
- [30] MANSUROV, Z. A.: *Soot Formation in Combustion Processes (Review)*. Combustion, Explosion, and Shock Waves, 41:727–744, 2005.
- [31] XI, J. und B. J. ZHONG: *Soot in Diesel Combustion Systems*. Chemical Engineering & Technology, 29:665–673, 2006.
- [32] NING, Z., C.S. CHEUNG und S.X. LIU: *Experimental Investigation of the Effect of Exhaust Gas Cooling on Diesel Particulate*. Journal of Aerosol Science, 35:333–345, 2004.
- [33] BURTSCHER, H.: *Physical Characterization of Particulate Emissions from Diesel Engines: A Review*. Journal of Aerosol Science, 36:896–932, 2005.
- [34] SCHNEIDER, J., N. HOCK, S. WEIMER, S. BORRMANN, U. KIRCHNER, R. VOGT und V. SCHEER: *Nucleation Particles in Diesel Exhaust: Composition Inferred from In Situ Mass Spectrometric Analysis*. Environmental Science & Technology, 39:6153–6161, 2005.
- [35] HINDS, W.C.: *Aerosol Technology. Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*. Wiley Interscience, New York, 1999.
- [36] VOGT, R., V. SCHEER, R. CASATI und T. BENTER: *On-Road Measurement of Particle Emission in the Exhaust Plume of a Diesel Passenger Car*. Environmental Science & Technology, 37:4070–4076, 2003.
- [37] HARRIS, S.J. und M.M. MARICQ: *The Role of Fragmentation in Defining the Signature Size Distribution of Diesel Soot*. Journal of Aerosol Science, 33:935–942, 2002.

- [38] FROST, J.C. und G. SMEDLER: *Control of NO_x Emissions in Diesel Powered Light Vehicles*. Catalysis Today, 26:207–214, 1995.
- [39] KITTELSON, D.B.: *Engines and Nanoparticles: A Review*. Journal of Aerosol Science, 29:575–588, 1998.
- [40] TENG, H. und M. BARNARD: *Physicochemical Characteristics of Soot Deposits in EGR Coolers*. SAE Technical Paper Nr. 2010-01-0730, 2010.
- [41] COLLURA, S., N. CHAOU, B. AZAMBRE, G. FINQUENEISEL, O. HEINTZ, A. KRZTON, A. KOCH und J.V. WEBER: *Influence of the Soluble Organic Fraction on the Thermal Behaviour, Texture and Surface Chemistry of Diesel Exhaust Soot*. Carbon, 43:605–613, 2005.
- [42] MARICQ, M.M., D.H. PODSIADLIK und R.E. CHASE: *Size Distributions of Motor Vehicle Exhaust PM: A Comparison between ELPI and SMPS Measurements*. Aerosol Science and Technology, 33:239–260, 2000.
- [43] HARRIS, S.J. und M.M. MARICQ: *Signature Size Distributions for Diesel and Gasoline Engine Exhaust Particulate Matter*. Journal of Aerosol Science, 32:749–764, 2001.
- [44] MARICQ, M.M., D.H. PODSIADLIK und R.E. CHASE: *Examination of the Size-Resolved and Transient Nature of Motor Vehicle Particle Emissions*. Environmental Science & Technology, 30:1618–1626, 1999.
- [45] SHI, J.P., R.M. HARRISON und F. BREAR: *Particle Size Distribution from a Modern Heavy Duty Diesel Engine*. The Science of the Total Environment, 235:305–317, 1999.
- [46] KAISER, F.-W. und R. KONIECZNY: *Filtersysteme zur Rußpartikel-Reduktion im Abgas von Diesel-Kraftfahrzeugen - Technologien und Randbedingungen*. Emitec HdT-Tagung, 2006.
- [47] MARICQ, M.M., D.H. PODSIADLIK und R.E. CHASE: *Gasoline Vehicle Par-*

- title Size Distributions: Comparison of Steady State, FTP, and US06 Measurements.* Environmental Science & Technology, 33:2007–2015, 1999.
- [48] GRILLOT, J.M. und G. ICART: *Fouling of a Cylindrical Probe and a Finned Tube Bundle in a Diesel Exhaust Environment.* Experimental Thermal and Fluid Science, 14:442–454, 1997.
- [49] WEIGERT, A.: *Rastertunnelspektroskopie an Füllstoffrußen.* Doktorarbeit, Universität Regensburg, 2005.
- [50] SU, D.S., J.-O. MÜLLER, R.E. JENTOFT, D. ROTHE, E. JACOB und R. SCHLÖGL: *Fullerene-Like Soot from Euro IV Diesel Engine: Consequences for Catalytic Automotive Pollution Control.* Topics in Catalysis, 30/31:241–245, 2004.
- [51] LIU, B.Y.H. und D.Y.H. PUI: *On the Performance of the Electrical Aerosol Analyzer.* Journal of Aerosol Science, 6:249–264, 1975.
- [52] EGGENBERGER, U., A.-M. FORSS, C. BACH AN H. BURTSCHER und A. PAUL: *Partikelcharakterisierung in Verbrennungsabgasen.* Chimia, 48:232–239, 1994.
- [53] LEVSEN, K.: *Review - The Analysis of Diesel Particulate.* Fresenius Zeitschrift für Analytische Chemie, 331:467–478, 1988.
- [54] KAMPA, M. und E. CASTANAS: *Human Health Effects of Air Pollution.* Environmental Pollution, 151:362–367, 2008.
- [55] SALVI, S.S., C. NORDENHALL, A. BLOMBERG, B. RUDELL, J. POURAZAR, F.J. KELLY, S. WILSON, T. SANDSTRÖM, S.T. HOLGATE und A.J. FREW: *Acute Exposure to Diesel Exhaust Increases IL-8 and GRO- α Production in Healthy Human Airways.* American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine, 161:550–557, 2000.
- [56] WICHMANN, H.-E. und A. PETERS: *Epidemiological Evidence of the Effects*

- of Ultrafine Particle Exposure*. Philosophical Transactions of the Royal Society London A, 358:2751–2769, 2000.
- [57] SU, D. S., A. SERAFINO, J.-O. MÜLLER, R. E. JENTOFT, R. SCHLÖGL und S. FIORITO: *Cytotoxicity and Inflammatory Potential of Soot Particles of Low-Emission Diesel Engines*. Environmental Science & Technology, 42:1761–1765, 2008.
- [58] STAMPFL, A., M. MAIER, R. RADYKEWICZ, P. REITMEIR, M. GÖTTLICHER und R. NIESSNER: *Langendorff Heart: a Model System to study Cardiovascular Effects of Engineered Nanoparticles*. ACS Nano, 5:5345–5353, 2011.
- [59] ENGEL, P.K., R.E. THOMPSON und R. SILVESTRINI: *Corrosion and Fouling Potential in Diesel Exhausts*. Journal of Engineering for Power, 101:598–606, 1979.
- [60] ROTHE, D., S. KAMM, H. BAUMANN, E. JACOB, R. NIESSNER und U. PÖSCHL: *Determination of the Sulfate Content of Diesel Exhaust Particulate Matter*. In: *Abstracts of the European Aerosol Conference*, 2001.
- [61] TRUEX, T.J., W.R. PIERSON und D.E. MCKEE: *Sulfate in Diesel Exhaust*. Environmental Science & Technology, 14:1118–1121, 1980.
- [62] CORRO, G.: *Sulfur Impact on Diesel Emission Control - a Review*. Reaction Kinetics and Catalysis Letters, 75:89–106, 2002.
- [63] ZELDOVICH, A.: *The Oxidation of Nitrogen in Combustions and Explosions*. Acta Physicochimica USSR, 21:577, 1946.
- [64] FENIMORE, C. P.: *Studies of Fuel-Nitrogen Species in Rich Flame Gases*. In: *Symposium on Combustion, Schenectady*, 1979.
- [65] WORD HEALTH ORGANIZATION, REGIONAL OFFICE FOR EUROPE: *Air Quality Guidelines for Europe*. WHO Regional Publications, Copenhagen, 2000.

- [66] HOUGHTON, J.T., Y. DING, D.J. GRIGGS, M. NOGUER, P.J. VAN DER LINDEN, X. DAI, K. MASKELL und C.A. JOHNSON: *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Cambridge University Press, Cambridge, 2001.
- [67] JOHNSON, J.E. und D.B. KITTELSON: *Deposition, Diffusion and Adsorption in the Diesel Oxidation Catalyst*. Appl. Catalysis B: Environmental, 10:117–137, 1996.
- [68] ABD-ALLA, G.H.: *Using Exhaust Gas Recirculation in Internal Combustion Engines: A Review*. Energy Conversion & Management, 43:1027–1042, 2002.
- [69] HOARD, J., M. ABARHAM, D. STYLES, J.M. GIULIANO, C. S. SLUDER und J.M.E. STOREY: *Diesel EGR Cooler Fouling*. SAE Technical Paper Nr. 2008-01-2475, 2008.
- [70] CASTAÑO, C., A. SANCHEZ, J.A. GRANDE und C. PAZ: *Advantages in the EGR Cooler Performance by Using Internal Corrugated Tubes Technology*. SAE Technical Paper Nr. 2007-26-019, 2007.
- [71] MAIBOOM, A., X. TAUZIA und J.-F. HÉTET: *Experimental Study of Various Effects of Exhaust Gas Recirculation (EGR) on Combustion and Emissions of an Automotive Direct Injection Diesel Engine*. Energy, 33:22–34, 2008.
- [72] ZELENKA, P., H. AUFINGER, W. RECZEK und W. CARTELLIERI: *Cooled EGR - A Key Technology for Future Efficient HD Diesels*. SAE Technical Paper Nr 980190, 1998.
- [73] MUNCRIEF, R.L., C.W. ROOKS, M. CRUZ und M.P. HAROLD: *Combining Biodiesel and Exhaust Gas Recirculation for Reduction in NO_x and Particulate Emissions*. Energy & Fuels, 22:1285–1296, 2008.
- [74] KRISHNAMURTHY, M., D.K. CARDER, G. THOMPSON und M. GAUTAM: *Cost of Lower NO_x Emissions: Increased CO_2 Emissions from Heavy-Duty Diesel Engines*. Atmospheric Environment, 41:666–675, 2007.

- [75] LADOMMATOS, N., S. ABDELHALIM und H. ZHAO: *The Effects of Exhaust Gas Recirculation on Diesel Combustion and Emissions*. International Journal of Engine Research, 1:107–126, 2000.
- [76] ANGRILL, O., H. GEITLINGER, T. STREIBEL, R. SUNTZ und H. BOCKHORN: *Influence of Exhaust Gas Recirculation on Soot Formation in Diffusion Flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 28:2643–2649, 2000.
- [77] GESKES, P., J. RUCKWIED, A. BERGMANN, R. BRÜCK, M. BRUGGER und T. MOSCH: *Der integrierte Metallkatalysator im Abgaswärmetauscher – eine innovative Lösung für zukünftige Abgas-Rückführ-Systeme*. 10. TAE Symposium, 2006.
- [78] MELGAR, A., A. HORRILO, G. CABACO, C. CASTAÑO und J.A. GRANDE: *Theoretical and Experimental Methodology for the Improvement of EGR-Coolers Design*. SAE Technical Paper Nr. 2004-01-0052, 2004.
- [79] HONMA, J., T. MURAO, Y. YAMASHITA, M. TSUJITA und H. SUGIHARA: *Development of a Highly Efficient and Reliable Multi-Tube EGR Cooler*. SAE Technical Paper Nr. 2004-01-1446, 2004.
- [80] BRAVO, Y., J. L. LÁZARO und J. L. GARCIA-BERNARD: *Study of Fouling Phenomena on EGR Coolers due to Soot Deposits. Development of a Representative Test Method*. SAE Technical Paper Nr. 2005-01-1143, 2005.
- [81] USUI, S., K. ITO und K. KATO: *The Effect of Semi-Circular Micro Riblets on the Deposition of Diesel Exhaust Particulate*. SAE Technical Paper Nr. 2004-01-0969, 2004.
- [82] SU, D.S., R.E. JENTOFT, J.-O. MÜLLER, D. ROTHE, E. JACOB, C.D. SIMPSON, Ž. TOMOVIC, K. MÜLLEN, A. MESSERER, U. PÖSCHL, R. NIESSNER und R. SCHLÖGL: *Microstructure and Oxidation Behaviour of Euro IV Diesel Engine Soot: A Comparative Study with Synthetic Model Soot Substances*. Catalysis Today, 90:127–132, 2004.

- [83] WEBER, O., D. GÖBEL-VOGT und P. KAIPING: *Verminderung der Ablagerungen in Abgaswärmeübertragern von Verbrennungsmotoren*. Abschlussbericht FVV-Projekt Nr. 374, Heft Nr. 429, 1989.
- [84] MATHIS, U., M. MOHR, R. KAEGI, A. BERTOLA und K. BOULOUCHOS: *Influence of Diesel Engine Combustion Parameters on Primary Soot Particle Diameter*. *Environmental Science & Technology*, 39 (6):1887–1892, 2005.
- [85] FUJIWARA, Y. und S. FUKAZAWA: *Growth and Combustion of Soot Particulates in the Exhaust of Diesel Engines*. SAE Technical Paper Nr. 800984, 1980.
- [86] AL-QURASHI, K. und A.L. BOEHMANN: *Impact of Exhaust Gas Recirculation (EGR) on the Oxidative Reactivity of Diesel Engine Soot*. *Combustion and Flame*, 155:675–695, 2008.
- [87] SATTELMAYER, T., J. GRÜNWARD und S. STEINBACH: *Wirbelmischer für SCR-Verfahren im Pkw*. *MTZ Motortechnische Zeitschrift*, 66:44–48, 2005.
- [88] BRÜCK, R., W. MAUS und P. HIRTH: *Innovative Abgasnachbehandlung als Wegbereiter fortschrittlicher, umweltfreundlicher Otto- und Dieselmotoren*. In: *AVL Tagung Motor & Umwelt*, Seiten 1–14, 2006.
- [89] BRADLEY, L. E., K. BALAKRISHNAN und M. RUMMINGER: *Experiments and Analysis of Diesel Particulate Filter Loading and Regeneration*, 2000.
- [90] KLADOPOULOU, E. A., S. L. YANG, J. H. JOHNSON, G. G. PARKER und A. G. KONSTANDOPOULOS: *A Study Describing the Performance of Diesel Particulate Filters During Loading and Regeneration - A Lumped Parameter Model for Control Applications*. *Soc. Automot. Eng.*, SP-1755:193–214, 2003.
- [91] OPRIS, C. N. und J. H. JOHNSON: *A 2-D Computational Model Describing the Flow and Filtration Characteristics of a Ceramic Diesel Particulate Trap*. *Society of Automotive Engineers*, SP-1313:149–175, 1998.

- [92] SEGUELONG, T. und W. NASCHKE.: *Series Application of a Diesel Particulate Filter with Ceria - Based Fuel-Borne Catalyst*. MTZ Motortechnische Zeitschrift, 63:186, 2002.
- [93] NOVEL-CATTIN, F. und F. DIONNET: *Evaluation Method for Several Diesel Particulate Trap Regeneration Additives: Application to Five Additives*. SAE Technical Paper Nr. 2000-2001-1914, 2000.
- [94] COOPER, B. J., H. J. JUNG und J. E. THOSS: *Treatment of Diesel Exhaust Gases*. U.S. Patent, Nr. 4.902.487, 1990.
- [95] VAARASLAHTI, K., A. VIRTANEN, J. RISTIMÄKI und J. KESKINEN: *Nucleation Mode Formation in Heavy-Duty Diesel Exhaust with and without a Particulate Filter*. Environmental Science & Technology, 38:4884–4890, 2004.
- [96] ZHAO, H., Y. GE, X. WANG, J. TAN, A. WANG und K. YOU: *Effects of Fuel Sulfur Content and Diesel Oxidation Catalyst on PM Emitted from Light-Duty Diesel Engine*. Energy Fuels, 24:985–991, 2010.
- [97] BERGLES, A.E. und E.F. SOMERSCALES: *The Effect of Fouling on Enhanced Heat Transfer Equipment*. Journal of Enhanced Heat Transfer, 2:157–166, 1995.
- [98] GRANDGEORGE, S., C. JALLUT und B. THONON: *Particulate Fouling of Corrugated Plate Heat Exchangers. Global Kinetic and Equilibrium Studies*. Chemical Engineering Science, 53:3051–3071, 1998.
- [99] BOTT, T.R.: *Fouling of Heat Exchangers*. Elsevier Science B.V., Amsterdam, 1995.
- [100] ABARHAM, M., J. HOARD, D. ASSANIS, D. STYLES, E.W. CURTIS, N. RAMESH, C.S. SLUDER und J.M.E. STOREY: *Numerical Modelling and Experimental Investigations of EGR Cooler Fouling in a Diesel Engine*. SAE Technical Paper Nr. 2009-01-1506, 2009.

- [101] BANKS, D.O. und G.J. KUROWSKI: *Diffusion Deposition on a Cylinder Due to Nearly Parallel Flow*. *Aerosol Science and Technology*, 8:189–196, 1988.
- [102] PRATSINIS, S.E. und K.-S. KIM: *Particle Coagulation, Diffusion and Thermophoresis in Laminar Tube Flows*. *Journal of Aerosol Science*, 20:101–111, 1989.
- [103] ROMAY, F.J., S.S. TAKAGAKI, D.Y.H. PUI und B.Y.H. LIU: *Thermophoretic Deposition of Aerosol Particles in Turbulent Pipe Flow*. *Journal of Aerosol Science*, 29:943–959, 1998.
- [104] FRIEDLANDER, S.K.: *Smoke, Dust, and Haze. Fundamentals of Aerosol Dynamics*. Oxford University Press, New York, 2000.
- [105] INCROPERA, F.P., D.P. DEWITT, T.L. BERGMAN und A.S. LAVINE: *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. John Wiley & Sons, Hoboken, N.J., 2007.
- [106] POLIFKE, W. und J. KOPITZ: *Wärmeübertragung. Grundlagen, analytische und numerische Methoden*. Pearson Studium, München, 2005.
- [107] SILVESTRINI, R.: *Heat Exchanger Fouling and Corrosion*. *Chemical Engineering Progress*, 75:29–35, 1979.
- [108] SLUDER, C., J.M.E. STOREY, S.A. LEWIS, D. STYLES, J. GIULIANO und J.W. HOARD: *Hydrocarbons and Particulate Matter in EGR Cooler Deposits: Effects of Gas Flow Rate, Coolant Temperature, and Oxidation Catalyst*. SAE Technical Paper Nr. 2008-01-2467, 2008.
- [109] WALDMANN, L. und K.H. SCHMITT: *Thermophoresis and Diffusiophoresis of Aerosols*. In: *Aerosol Science*, Seiten 137–162. C.N. Davies, 1966.
- [110] GOLDSMITH, P. und F.G. MAY: *Diffusiophoresis and Thermophoresis in Water Vapor Systems*. In: *Aerosol Science*, Seiten 163–194. C.N. Davies, 1966.

- [111] BROCK, JAMES R.: *Forces on Aerosols in Gas Mixtures*. Journal of Colloid Science, 18:489–501, 1963.
- [112] WHITMORE, P.J. und A. MEISEN: *The Theory of Diffusiophoresis for Large Aerosol Particles*. Journal of Aerosol Science, 7:297–310, 1976.
- [113] PRODI, F., G. SANTACHIARA und C. CORNETTI: *Measurements of Diffusiophoretic Velocities of Aerosol Particles in the Transition Region*. Aerosol Science, 33:181–188, 2002.
- [114] LEONG, K.H.: *Thermophoresis and Diffusiophoresis of Large Aerosol Particles of Different Shapes*. Journal of Aerosol Science, 15:511–517, 1984.
- [115] DAVIES, C.N.: *Aerosol Science*. Academic Press, 1966.
- [116] ZHENG, F.: *Thermophoresis of Spherical and Non-Spherical Particles: A Review of Experiments and Methods*. Advances in Colloid and Interface Science, 97:255–278, 2002.
- [117] HE, C. und G. AHMADI: *Particle Deposition with Thermophoresis in Laminar and Turbulent Duct Flows*. Aerosol Science and Technology, 29:525–546, 1998.
- [118] MONTASSIER, N., D. BOULAUD und A. RENOUX: *Experimental Study of Thermophoretic Particle Deposition in Laminar Tube Flow*. Journal of Aerosol Science, 22:677–687, 1991.
- [119] TALBOT, L., R.K. CHENG, R.W. SCHEFER und D.R. WILLIS: *Thermophoresis of Particles in a Heated Boundary Layer*. Journal of Fluid Mechanics, 101:737–758, 1980.
- [120] BRAIBANTI, M., D. VIGOLO und R. PIAZZA: *Does Thermophoretic Mobility Depend on Particle Size?* Physical Review Letters, 100:108303–1 – 108303–4, 2008.
- [121] MESSERER, A., R. NIESSNER und U. PÖSCHL: *Thermophoretic Deposition*

-
- of Soot Aerosol Particles under Experimental Conditions Relevant for Modern Diesel Engine Exhaust Gas Systems.* Journal of Aerosol Science, 34:1009–1021, 2003.
- [122] YU, C.P., C.S. LIU und D.B. TAULBEE: *Simultaneous Diffusion and Sedimentation of Aerosols in a Horizontal Cylinder.* Journal of Aerosol Science, 8:309–316, 1977.
- [123] LEE, K.W. und J.A. GIESEKE: *Deposition of Particles in Turbulent Pipe Flows.* Journal of Aerosol Science, 25:699–709, 1994.
- [124] TSAI, CH., J.-S. LIN, S.G. AGGARWAL und D.-R. CHEN: *Thermophoretic Deposition of Particles in Laminar and Turbulent Tube Flows.* Aerosol Science and Technology, 38:131–139, 2004.
- [125] FRIEDLANDER, S.K. und H.F. JOHNSTONE: *Deposition of Suspended Particles from Turbulent Gas Streams.* Industrial and Engineering Chemistry, 49:1051–1056, 1957.
- [126] FICHMAN, M., C. GUTFINGER und D. PNUELI: *A Model for Turbulent Deposition of Aerosols.* Journal of Aerosol Science, 19:123–136, 1988.
- [127] MÜLLER-STEINHAGEN, H.: *Modellierung der Ablagerungsbildung in Wärmeübertragern.* ESYTEC-Verlag, Erlangen, 2000.
- [128] MESSERER, A., V. SCHMATLOCH, U. PÖSCHL und R. NIESSNER: *Combined Particle Emission Reduction and Heat Recovery from Combustion Exhaust - A Novel Approach for Small Wood-Fired Appliances.* Biomass & Bioenergy, 31:512–521, 2007.
- [129] GRÖHN, ARTO, VALTTERI SUONMAA, ARI AUVINEN, KARI E.J. LEHTINEN und JORMA JOKINIEMI: *Reduction of Fine Particle Emissions from Wood Combustion with Optimized Condensing Heat Exchangers.* Environmental Science & Technology, 43:6269–6274, 2009.

- [130] CHIEN, C.-L., S.-H. HUANG und C.-J. TSAI: *A New Cross-Flow Tube Bundle Heat Exchanger with Staggered Hot and Cold Tubes for Thermophoretic Deposition of Submicron Aerosol Particles*. *Aerosol Science and Technology*, 43:1153–1163, 2009.
- [131] LEPPERHOFF, G. und M. HOUBEN: *Mechanisms of Deposit Formation in Internal Combustion Engines and Heat Exchangers*. SAE Technical Paper Nr. 931032, 1993.
- [132] KEARN, D.Q. und R.E SEATON: *A Theoretical Analysis of Thermal Surface Fouling*. *British Chemical Engineering*, 4:258–262, 1959.
- [133] PHILIPPS, M.: *A Force Balance Model for Particle Entrainment into a Fluid System*. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 13:221–233, 1980.
- [134] YUNG, B.P.K., H. MERRY und T.R. BOTT: *The Role of Turbulent Bursts in Particle Re-entrainment in Aqueous Systems*. *Chemical Engineering Science*, 44:873–882, 1989.
- [135] CLEAVER, J.W. und B. YATES: *Mechanism of Detachment of Colloidal Particles from Flat Substrate in a Turbulent Flow*. *Journal of Colloid and Interface Science*, 44:464–474, 1973.
- [136] HÖRNIG, G., P. VÖLK, G. WACHTMEISTER und R. NIESSNER: *Verschmutzung von AGR-Kühlern I: Untersuchung der Ablagerungsmechanismen auf der gassseitigen Oberfläche von Abgaswärmetauschern und die Entwicklung von Lösungsansätzen zu ihrer Vermeidung und zum Ablösen der Ablagerung*. Abschlussbericht FVV-Projekt Nr. 966, Heft Nr. 929, 2011.
- [137] HELSPER, C., W. MÖLTER, F. LÖFFLER, C. WADENPOHL, S. KAUFMANN und G. WENNINGER: *Investigations of a new Aerosol Generator for the Production of Carbon Aggregate Particles*. *Atmospheric Environment*, 27A:1271–1275, 1993.

- [138] JING, L.: *Neuer Rußgenerator für Verbrennungsrußteilchen zur Kalibrierung von Partikelmessgeräten*. Ofmet Info, 7:1–5, 2000.
- [139] BARTHAZY, E., O. STETZER, C. DERUNGS, S. WAHLEN und U. LOHMANN: *Charakterisierung eines Propan-Russ-Generators*. In: *Kurzfassungen der Meteorologentagung DACH*, Band 1, 2007.
- [140] *EU Richtlinie 1999/98/EG des Europäischen Parlamentes und Rates für die Untersuchungen von Abgasemissionen*, 1999.
- [141] KNUTSON, E.O. und K.T. WHITBY: *Aerosol Classification by Electric Mobility: Apparatus, Theory and Applications*. Journal of Aerosol Science, 6:443–451, 1975.
- [142] WIEDENSOHLER, A., E. LÜTKEMEIER, M. FELDPAUSCH und C. HELSPER: *Investigation of the Bipolar Charge Distribution at various Gas Conditions*. Journal of Aerosol Science, 17:413–416, 1986.
- [143] WANG, S.CH. und R.C. FLAGAN: *Scanning Electrical Mobility Spectrometer*. Aerosol Science and Technology, 13:230–240, 1990.
- [144] TSI INCORPORATED: *Instruction Manual for Model 3025/3027 Ultrafine Condensation Particle Counter*, 1990.
- [145] VDI: *Chemisch-analytische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffes nach Extraktion und Thermodesorption des organischen Kohlenstoffes*. VDI-Richtlinie 2465, Blatt 1, 1995.
- [146] PETZOLD, A.: *Der Photoakustische Rußsensor zur in situ-Detektion und eine thermische Methode zur Analyse von Filterproben*. Doktorarbeit, Technische Universität München, 1995.
- [147] FIEBIG, M., M. KNAUER, J. SCHMID, N. IVLEVA, H.-H. GROTHEER, K. HOFFMANN und C. WAHL: *Reaktiver Ruß - Filterregeneration durch reaktiven Ruß*. Abschlussbericht FVV-Projekt Nr. 954, Heft Nr. 943, 2009.

- [148] SADEZKY, A., H. MUCKENHUBER, H. GROTHE, R. NIESSNER und U. PÖSCHL: *Raman Spectra of Soot and Related Carbonaceous Materials: Spectral Analysis and Structural Information*. Carbon, 43(8):1731–1742, 2005.
- [149] DOMANUS, J.C.: *Practical Neutron Radiography*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1992.
- [150] HARMS, A.A.: *Mathematics and Physics of Neutron Radiography*. D. Reidel Publishing, Dordrecht, 1986.
- [151] ISMAIL, B., D. EWING, J.-S. CHANG und J.S. COTTON: *Development of a Non-Destructive Neutron Radiography Technique to Measure the Three-Dimensional Soot Deposition Profiles in Diesel Engine Exhaust Systems*. Journal of Aerosol Science, 35:1275–1288, 2004.
- [152] ISHIGURO, I., Y. TAKATORI und K. AKIHAMA: *Microstructure of Diesel Soot Particles Probed by Electron Microscopy: First Observation of Inner Core and Outer Shell*. Combustion Flame, 108:231–234, 1997.
- [153] BURTSCHER, H., S. KÜNZEL und C. HÜGLIN: *Characterization of Particles in Combustion Engine Exhaust*. Journal of Aerosol Science, 29:389–396, 1998.
- [154] GRÜNAUER, F.: *Design, Optimization, and Implementation of the new Neutron Radiography Facility at FRM-II*. Doktorarbeit, Technische Universität München, 2005.
- [155] <http://www.frm2.tum.de/wissenschaftliche-nutzung/radiographie/antares>
Stand: 21.12.2010.
- [156] TRÄNKLER, H.R. und E. OBERMEIER: *Sensortechnik*. Springer Verlag, Berlin, 1998.
- [157] TSI INCORPORATED: *Instruction Manual for Model 3068B Aerosol Electrometer*.

- [158] GREEN, D. W. und R.H. PERRY: *Perry's Chemical Engineers' Handbook*. McGrawHill, New York, 2008.
- [159] LIN, J.-S. und C.-J. TSAI: *Thermophoretic Deposition Efficiency in a Cylindrical Tube Taking into Account Developing Flow at the Entrance Region*. Journal of Aerosol Science, 34:596–598, 2003.
- [160] STRATMANN, F., E. OTTO und H. FISSAN: *Thermophoretical and Diffusional Particle Transport in Cooled Laminar Tube Flow*. Journal of Aerosol Science, 25:1305–1319, 1994.
- [161] BATCHELOR, G.K. und C. SHEN: *Thermophoretic Deposition of Particles in Gas Flowing over Cold Surfaces*. Journal of Colloid and Interface Science, 107:21–37, 1985.
- [162] BYERS, R.L. und S. CALVERT: *Particle Deposition from Turbulent Streams by Means of Thermal Force*. Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 8:646–655, 1969.
- [163] NISHIO, G., S. KITANI und K. TAKAHASHI: *Thermophoretic Deposition of Aerosol Particles in a Heat-Exchanger Pipe*. Industrial & Engineering Chemistry: Process Design and Development, 13:408–415, 1974.
- [164] KALB, J. und T. STEINHILBER: *Arbeitsunterlagen zu den Vorlesungen Wärmetransportphänomene und Wärme- und Stoffübertragung*. Technische Universität München, 2005.
- [165] MUÑOZ-BUENO, R., E. HONTAÑÓN und M.I. RUCANDIO: *Deposition of Fine Aerosols in Laminar Tube Flow at High Temperature with large Gas-to-Wall Temperature Gradients*. Journal of Aerosol Science, 36:495–520, 2005.
- [166] SCHMITT, K.H. und L. WALDMANN: *Untersuchungen an Schwebstoffteilchen in diffundierenden Gasen*. Zeitschrift für Naturforschung, 15a:843–851, 1960.

- [167] WHITMORE, P. J. und A. MEISEN: *Diffusiophoresis under Turbulent Conditions*. Journal of Aerosol Science, 4:435–446, 1973.
- [168] CHERNYAK, V. G., S. A. STARIKOV und S. A. BERESNEV: *Diffusiophoresis of an Aerosol Particle in a Binary Gas Mixture*. Journal of Applied Mechanics and Technical Physics, 42:445–454, 2001.
- [169] HIRSCHFELDER, J.O.: *Molecular Theory of Gases and Liquids*. John Wiley & Sons, New York, 1954.
- [170] HIRSCHFELDER, JOSEPH O., R. BYRON BIRD und ELLEN L. SPOTZ: *The Transport Properties of Gases and Gaseous Mixtures. II*. Chemical Reviews, 44:205–231, 1949.
- [171] ROEDEL, WALTER: *Measurement of Sulfuric Acid Saturation Vapor Pressure; Implications for Aerosol Formation by Heteromolecular Nucleation*. Journal of Aerosol Science, 10:375–386, 1979.
- [172] PÖSCHL, U., M. CANAGARATNA, J.T. JAYNE, L.T. MOLINA, D.R. WORSNOP, C.E. KOLB und M.J. MOLINA: *Mass Accomodation Coefficient of H_2SO_4 Vapor on Aqueous Sulfuric Acid Surfaces and Gaseous Diffusion Coefficient of H_2SO_4 in N_2 / H_2O* . Journal of Physical Chemistry A, 102:10082–10089, 1998.
- [173] MARTI, J.J., A. JEFFERSON, X.P. CAI, RICHERT C., P.H. MCMURRY und F. J. EISELE: *H_2SO_4 Vapor Pressure of Sulfuric Acid and Ammonium Sulfate Solutions*. Journal of Geophysical Research - Atmospheres, 102:3725–3735, 1997.
- [174] MUÑOZ-COBO, J.L., J. PEÑA, L.E. HERRANZ und A. PÉREZ-NAVARRO: *Steam Condensation on Finned Tubes, in the Presence of Non-Condensable Gases and Aerosols: Influence of Impaction, Diffusiophoresis and Settling on Aerosol Deposition*. Nuclear Engineering and Design, 235:1225–1237, 2005.
- [175] LEHTINEN, K.E.J., J. HOKKINEN, A.A.J.K. JOKINIEMI und R. E. GAMBLE: *Studies on Steam Condensation and Particle Diffusiophoresis in a Heat*

- Exchanger Tube*. Nuclear Engineering and Design, 213:67–77, 2002.
- [176] GOFF, J. A. und S. GRATCH: *Low-pressure Properties of Water from -160 to 212 °F*. 52nd Annual Meeting of the American Society of Heating and Ventilating Engineers, 1946.
- [177] KOUSAKA, YASUO und YOSHIYUKI ENDO: *Experiment on Diffusiophoresis of Aerosol Particles at Low Knudsen Numbers*. Journal of Aerosol Science, 24:611–617, 1993.
- [178] AYERS, G.P., R.W. GILLETT und J.L. GRAS: *On the Vapor Pressure of Sulfuric Acid*. Geophysical Research Letters, 7:433–436, 1980.
- [179] <http://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C112403&Units=SI&Mask=4>
Stand: 08.12.2011.
- [180] <http://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C544763&Units=SI&Mask=4>
Stand: 08.12.2011.
- [181] GORMLEY, P.G. und M. KENNEDY: *Diffusion from a Stream Flowing Through a Cylindrical Tube*. Proceedings of the Royal Irish Academy, 52A:163–169, 1949.
- [182] WEBER, O.: *Entwicklung kompakter Wärmeübertrager mit geringer Verschmutzungsneigung für Verbrennungsmotoren*. Abschlussbericht FVV-Projekt Nr. 425, Heft Nr. 474, 1991.
- [183] HÖRNIG, G., P. VÖLK, G. WACHTMEISTER und R. NIESSNER: *Modellbildung zum Verständnis der an der Ablagerungsbildung im AGR-Kühler beteiligten Mechanismen inklusive experimenteller Bestätigung*. Abschlussbericht FVV-Projekt Nr. 1048, Heft Nr. 952, 2012, im Druck.