Simulation von Autoabgasanlagen

vorgelegt von
Dipl.-Ing. Matija Bogdanić
aus Berlin

Von der Fakultät III – Prozesswissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften
– Dr.-Ing. –

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss

Vorsitzender:	Univ.-Prof. Dr.-Ing. Felix Ziegler
Gutachter:	Univ.-Prof. Dr. rer. nat. habil. Frank Behrendt
Gutachter:	Univ.-Prof. Dr.-Ing. Helmut Pucher

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 25. Mai 2007

Berlin 2007
D 83

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter im Fachgebiet Energieverfahrenstechnik und Umwandlungstechniken regenerativer Energien am Institut für Energietechnik der Technischen Universität Berlin. Das Projekt wurde in Kooperation mit der IAV GmbH in Berlin durchgeführt, die diese Arbeit finanzierte.

An dieser Stelle möchte ich Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. Frank Behrendt besonderen Dank für die Betreuung dieser Arbeit aussprechen. Das stets freundliche Arbeitsklima und die Möglichkeit des selbständigen Arbeitens in Prof. Behrendts Fachgebiet wusste ich immer zu schätzen. Dank gilt auch Herrn Prof. Dr.-Ing. Helmut Pucher für die Übernahme des Koreferats und Herrn Prof. Dr.-Ing. Felix Ziegler für die Übernahme des Vorsitzes des Promotionsausschusses.

Ich bedanke mich bei allen Mitarbeitern des RDH für die schöne Zeit und das kollegiale Verhältnis. Die freundliche Atmosphäre und die schon fast berüchtigten Feiern suchen ihresgleichen. Großer Dank gilt vor allem Birgit Wilmes, Nico Zobel und York Neubauer für ihre wissenschaftliche und kollegiale Unterstützung.

Ich möchte mich auch bei meinen Kollegen in der IAV GmbH in Berlin für die stets freundliche Atmosphäre bedanken. Ein großer Dank gilt vor allem Herrn Roland Serway, der die Finanzierung dieser Arbeit ermöglichte, und der sich stets für mich einsetzte. Ferner möchte ich Herrn Dr.-Ing. Thomas Offer danken, in dessen Team ich mich immer wohl fühlte und der jederzeit ein offenes Ohr für mich hatte. Ein besonderer Dank gilt Herrn Dr. rer. nat. Frank Mertins, der mit seinem Wissen und seiner Diskussionsbereitschaft den größten Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit hat.

Doch mein größter Dank gilt meinen Eltern Marica und Franjo für ihre jahrelange Unterstützung, meiner Schwester Laura, die mir oft mit Rat und Tat zur Seite stand, und vor allem meiner Verlobten Sandra, die mich in allem was ich tat bestärkte und besonders in der letzten Zeit jeglichen Stress von mir fern hielt.

Berlin, im Juni 2007 Matija Bogdanić

Inhaltsverzeichnis

Nomenklatur **XI**

Abstract **XVII**

1 Einleitung **1**

1.1 Gesetzliche Rahmenbedingungen 1

1.2 Stand der Forschung 4

1.3 Ziel dieser Arbeit 5

2 Monolithische Katalysatoren **9**

2.1 Einleitung 9

2.1.1 Charakterisierung monolithischer Katalysatoren 10

2.1.2 Washcoat – Edelmetalle 11

2.2 Bilanzgleichungen und Modelle 11

2.2.1 Kontinuitätsgleichung 12

2.2.2 Komponentenbilanz 12

2.2.3 Impulsbilanz 14

2.2.4 Energiebilanz 15

2.2.5 Strömungsprofil 18

2.2.6 Reaktionsgeschwindigkeit 18

2.2.7 Reaktionswärme 19

2.2.8 Randbedingungen 20

2.3 Drei-Wege-Katalysator 20

2.3.1 Reaktionen 20

2.3.2 Sauerstoffspeicher 22

2.4 Dieseloxidationskatalysator 25

2.4.1 Reaktionen 25

2.4.2 Bilanzierung der flüchtigen Bestandteile der Partikel (SOF) . . 25

3 Dieselpartikelfilter 27

3.1 Einleitung . . . 27

3.1.1 Regenerationsverfahren . . . 28

3.1.2 Dichte des Rußes . . . 29

3.2 Bilanzgleichungen und Modelle . . . 30

3.2.1 Geometrische Umrechnungen . . . 30

3.2.2 Dicke des Rußkuchens . . . 31

3.2.3 Kontinuitätsgleichung . . . 32

3.2.4 Komponentenbilanz im Ein-/Austrittskanal . . . 34

3.2.5 Impulsbilanz . . . 35

3.2.6 Energiebilanz . . . 39

3.2.7 Reaktionen . . . 44

3.2.8 Komponentenbilanz in der Rußschicht . . . 45

3.2.9 Partikelbilanz . . . 47

3.2.10 Reaktionswärme . . . 48

3.2.11 Randbedingungen und Lösen des Gleichungssystems . . . 48

3.3 Modellerweiterungen . . . 49

3.3.1 Dicke der Rußschicht des Porenrußes . . . 49

3.3.2 Korrektur des Wandmassenstroms . . . 50

3.3.3 2-Komponenten-Modell . . . 52

3.3.4 Schleichende Strömung . . . 55

4 Validierung des monolithischen Katalysators – der Drei-Wege-Katalysator 59

4.1 Einleitung . . . 59

4.2 Versuchsaufbau . . . 60

4.3 Versuchsdurchführung . . . 62

4.3.1 NEFZ – Neuer Europäischer Fahrzyklus . . . 63

4.3.2 Lambdasprünge . . . 64

4.3.3 Lastpunkte . . . 65

4.4 Bestimmung der Sauerstoffspeicherfähigkeit . . . 66

4.5 Anpassung der kinetischen Parameter anhand stationärer Lastpunkte des NEFZ . . . 69

4.6 Simulation des NEFZ . . . 72
4.7 Reproduzierbarkeit der Ergebnisse . . . 74
4.8 Anpassung der kinetischen Parameter anhand NEFZ-untypischer Lastpunkte . . . 75
4.9 Diskussion der kinetischen Parameter . . . 78
4.10 Fazit . . . 81

5 Validierung des Dieselpartikelfilters 83
5.1 Versuchsaufbau . . . 83
5.2 Versuchsdurchführung . . . 86
5.3 Anpassung der Druckverlustparameter . . . 87
5.4 Bilanzierung des Rußes . . . 88
5.5 Anpassung der reaktionskinetischen Parameter . . . 92
5.6 Testen der Anwendbarkeit – Validierung . . . 96
5.7 Modellerweiterungen/2D-Simulationen und deren Einfluss auf die Ergebnisse . . . 100
5.8 Wichtigkeit des Rußverlaufs . . . 109
5.9 Fazit . . . 111

6 Zusammenfassung und Ausblick 113

A Monolithische Katalysatoren 115
A.1 Parameter der Behinderungsterme der Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik . . . 115
A.2 Kinetische Parameter der Drei-Wege-Katalysator-Varianten . . . 116
A.3 Molanteile der NEFZ-Simulationen . . . 117
A.4 Daten der verwendeten Drei-Wege-Katalysatoren . . . 119
A.5 Vergleich der Reaktionsgeschwindigkeiten der Drei-Wege-Katalysator-Varianten . . . 120
A.6 Güte der Rechnungs-/Messungsvergleiche der Drei-Wege-Katalysator-Varianten . . . 120
A.7 Reaktionsenthalpien der Sauerstoffspeicherreaktionen . . . 121
A.7.1 Sauerstoffabgabe an Methan – Reaktion 8 . . . 121
A.7.2 Sauerstoffabgabe an Propen – Reaktion 9 . . . 121
A.7.3 Sauerstoffabgabe an Kohlenstoffmonoxid – Reaktion 10 . . . 121
A.7.4 Sauerstoffabgabe an Wasserstoff – Reaktion 11 . . . 122

B Dieselpartikelfilter **123**

B.1 Teilregenerierter Filter 123

B.2 Temperaturen der Ebene M4 einer 2D-Simulation 124

C Stoffwerte **125**

C.1 Abgas 125

C.2 Konverter 126

Literaturreferenzen **127**

Abbildungsverzeichnis

3.1 Bilanzelement des DPFs für den Eintrittskanal 32

3.2 Beladene Einheitszelle 50

3.3 Rußablagerung des 2-Komponenten-Modells 52

3.4 Kontinuumsströmung, molekulare Strömung und schleichende Strömung 55

3.5 Verhältnis des Druckverlusts unter dem Einfluss der schleichenden Strömung 57

4.1 Skizze der Versuchsanlage des Drei-Wege-Katalysators, Versuchsanlage B 60

4.2 Lage der Monolith- und Gasthermoelemente 61

4.3 Neuer Europäischer Fahrzyklus – NEFZ 63

4.4 Versuchsprogramm der Lastpunkte 66

4.5 Lambdasignal der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 67

4.6 OSC der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 68

4.7 OSC-Vergleich der verschiedenen Varianten für $\lambda > 1$ 69

4.8 Stationäre Lastpunkte zur Anpassung der kinetischen Parameter . . . 70

4.9 THC – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 70

4.10 CO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 70

4.11 NO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 71

4.12 O_2 – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 71

4.13 THC – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ 72

4.14 CO – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ 73

4.15 NO – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ 73

4.16 THC – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ 74

4.17 CO – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ 74

4.18 NO – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ 75
4.19 THC – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 NEFZ-untypischer Lastpunkte 76
4.20 CO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 NEFZ-untypischer Lastpunkte 76
4.21 Lambdasignal aller Lastpunkte der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 77
4.22 NO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 NEFZ-untypischer Lastpunkte 77
4.23 O_2 – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3 NEFZ-untypischer Lastpunkte 78
4.24 Abhängigkeit der Reaktionskinetik von der Katalysatorvariante . . . 79
4.25 Abhängigkeit der Reaktionskinetik von PML/GSA 80

5.1 Versuchsaufbau der DPF-Validierung 84
5.2 Thermoelementverteilung – radialer Querschnitt durch den Filter . . 85
5.3 Fotos der Versuchsanlage 85
5.4 Anpassung der Druckverlustparameter 87
5.5 CO_2-Verlauf der Kalibrierungsmessung 88
5.6 Vergleich der Rußbilanzen der Kalibrierung 89
5.7 Rußverlauf der Kalibrierung während der Regeneration 92
5.8 Selektivität bezüglich CO 93
5.9 CO-Molanteile der Kalibrierung während der Regeneration 94
5.10 Druckverlustverlauf der Kalibrierung während der Regeneration . . . 95
5.11 Temperaturverlauf der Kalibrierung während der Regeneration 95
5.12 Rußverlauf der Validierung während der Regeneration 96
5.13 CO-Molanteile der Validierung während der Regeneration 97
5.14 Druckverlustverlauf der Validierung während der Regeneration 98
5.15 Gemessener Druckverlust, Temperatur und Massenstrom für verschiedene Zustände 98
5.16 Temperaturverlauf der Validierung während der Regeneration 99
5.17 Einfluss der schleichenden Strömung auf den Druckverlust 101
5.18 Einfluss der schleichenden Strömung auf den Verlauf der Rußbeladung 101
5.19 Beladungskurven unkatalysierter SiC-Filter 103
5.20 Vergleich der Beladungskurven für das 1-/2-Komponenten-Modell . . 103

5.21 Einfluss der Parametervariation der Porenrußkinetik auf die Rußverläufe 104

5.22 Einfluss der Parametervariation der Porenrußkinetik auf den Druckverlust 105

5.23 Einfluss verschiedener Modelle auf die Abweichung der Rußbeladung . 105

5.24 Einfluss verschiedener Modelle auf die Abweichung des Druckverlusts 106

5.25 Druckverlust der Studie zum teilregenerierten Versuch 9 107

5.26 Vergleich der 1D-/2D-Simulation für Versuch 3, 2-Komponenten-Modell, höherer Porenrußabbrand 108

5.27 3D-Diagramm der Temperatur in Abhängigkeit von Radius und Zeit für Versuch 3 (Kalibrierung) 109

5.28 Sensitivitätsanalyse bezüglich der kinetischen Parameter des 2-Komponenten-Modells für Versuch 3 (Kalibrierung) 110

A.1 THC – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs 118

A.2 CO – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs . 118

A.3 NO – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs . 119

B.1 Rußverlauf und CO-Molanteile der Studie zum teilregenerierten Versuch 9 123

B.2 Vergleich der Temperaturen in der letzten Thermoelementebene M4 der 1D-/2D-Simulation für Versuch 3, 2-Komponenten-Modell, höherer Porenrußabbrand 124

Tabellenverzeichnis

1.1 Abgasgrenzwerte für Pkw 2

1.2 Auswirkung der Euro 5- und 6-Norm auf die Abgasgrenzwerte für Pkw 3

2.1 Reaktionen des Drei-Wege-Katalysators ohne Sauerstoffspeicher . . . 21

2.2 Sauerstoffspeicherreaktionen des Drei-Wege-Katalysators 22

2.3 Reaktionen des Dieseloxidationskatalysators 25

4.1 Geometrie der Versuchsanlage 60

4.2 Position der Thermoelemente bei den Drei-Wege-Katalysator-Versuchen 62

4.3 Lambdasprünge – Daten der stationären Lastpunkte aus dem Motorsteuergerät 64

4.4 Lambdasprünge 64

4.5 Lastpunkte – Daten aus dem Motorsteuergerät 65

5.1 Kennfeldpunkte der Regeneration 86

5.2 Vergleich der Rußbeladung durch Wägung und Bilanzierung der C-Atome 90

5.3 Fehlerabschätzung für CO_2 91

A.1 Parameter der Behinderungsterme 115

A.2 $E_{A,k}/R$ der kinetischen Parameter 116

A.3 $E_{A,k}/R$ der kinetischen Parameter für die Reaktionen des Sauerstoffspeichers 116

A.4 Frequenzfaktoren der Anpassung der kinetischen Parameter 117

A.5 Frequenzfaktoren der Anpassung der kinetischen Parameter für die Reaktionen des Sauerstoffspeichers 117

A.6 Katalysatorvarianten 119

A.7 Vergleich der Reaktionsgeschwindigkeiten der Drei-Wege-Katalysator-Varianten 120

A.8 Prozentuale Abweichung zwischen Messung und Simulation 120

C.1 Stoffwerte des Abgases 125

C.2 Stoffwerte der Konverter 126

Nomenklatur

Lateinische Buchstaben

Zeichen	Bedeutung	SI-Einheit
A	Fläche	m^2
$\overline{A}$	mittlere Fläche	m^2
A_{sf}	Ober-/Mantelfläche	m^2
B	Permeabilität	m^2
a	volumenspezifische Oberfläche	$\mathrm{m}^2/\mathrm{m}^3$
c	Konzentration	$\mathrm{mol}/\mathrm{m}^3$
c_{p}	spezifische Wärmekapazität	J/(kg K)
c_{f}	Reibungsbeiwert	–
C	Faktor	–
d	Durchmesser	m
$\overline{d}$	mittlerer Durchmesser	m
d_{h}	hydraulischer Durchmesser	m
D	Diffusionskoeffizient	m^2/s
E_{A}	Aktivierungsenergie	J/mol
e	Fehler, Abweichung	–
f	Term der Volumenkraft der allgemeinen Impulsbilanz	m/s^2
G_1, G_2	Verhinderungsterme der Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik	–
g	Fallbeschleunigung	m/s^2
h	massenspezifische Enthalpie	J/kg
$h_{i,\mathrm{conv}}$	Transportkoeffizient	*variabel*
$\tilde{h}^0$	molare Standardbildungsenthalpie	J/mol
Δh^{R}	massenspezifische Reaktionsenthalpie	J/kg
$\Delta \tilde{h}^{\mathrm{R}}$	molare Reaktionsenthalpie	J/mol
K	Faktor des Behinderungsterms	–
k	Wärmeleitfähigkeit	W/(m K)
k	Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizient	*variabel*
k_0	Frequenzfaktor	*variabel*
$\hat{k}_0$	für den Umsatz repräsentativer Frequenzfaktor	$\mathrm{mol}/(\mathrm{m}^3\ \mathrm{s})$
L	Länge	m
L_0	charakteristische Länge	m

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Zeichen	Bedeutung	SI-Einheit
L_{St}	stöchiometrischer Luftbedarf	–
M	Masse	kg
$\dot{M}$	Massenstrom	kg/s
$\tilde{M}$	Molmasse	kg/mol
N	Anzahl	–
n	Reaktionsordnung	–
n_{Mot}	Motordrehzahl	1/s
n_i	Normalenvektor	–
$\dot{n}$	Stoffstromdichte	mol/(m^2 s)
p	Druck	Pa
Δp	Druckverlust	kPa
q_i	Leistungsdichte in Tensornotation der allgemeinen Energiebilanz	W/m^2
$\dot{q}$	Wärmestromdichte	W/m^2
$\dot{q}_R$	Reaktionswärme	W/m^3
$\dot{q}_R^*$	homogenisierte Reaktionswärme	W/m^3
R	ideale Gaskonstante im Teilchenbezugssystem	J/(mol K)
R_{m}	ideale Gaskonstante im Schwerpunktssystem	J/(kg K)
r	Radius	m
r^+	normierter Radius	–
$\dot{r}$	molare/massenspezifische Reaktionsgeschwindigkeit	*variabel*
T	Temperatur	K
t	Zeit	s
t_{ji}	Spannungstensor	N/m^2
u	massenspezifische innere Energie	J/kg
V	Volumen	m^3
$\dot{V}$	Volumenstrom	m^3/s
w	Geschwindigkeit	m/s
w^*	Leerrohrgeschwindigkeit	m/s
x_i	Raumrichtung in Tensornotation	m
$\tilde{x}$	Molanteil	–
z	axiale Koordinate	m
z	Strahlungsterm der allgemeinen Energiebilanz	J/(kg s)

Indizes

Zeichen	Bedeutung
0	Anfang, Zeitpunkt $t = 0$ (*tiefgestellt*)
	leerer Filter (*hochgestellt*)
	unbeschichteter Katalysator, kein Washcoat (*hochgestellt*)
a	Luft (engl.: air)
amb	Umgebung (engl.: ambience)
ax	axial
bulk	roh (engl.: bulk)
cake	Filterkuchen (engl.: cake)
cat	Katalysator (engl.: catalyst)
cell	Zelle (engl.: cell)
cf	Queranströmung (engl.: cross flow)
ch	Kanal (engl.: channel)
conv	konvektiv (engl.: convective)
cs	Querschnitt (engl.: cross section)
DPF	Dieselpartikelfilter (engl.: diesel particulate filter)
D	Diffusion (engl.: diffusion)
eff	effektiv
Exh	Abgas (engl.: exhaust)
FL	Modell von Friedlander
f	Kraftstoff (engl.: fuel)
g	Gasphase
gl	Kleber (engl.: glue)
h	hydraulisch
HT	Wärmeübergang (engl.: heat transfer)
in	Eingang (engl.: inlet)
iso	Isolierung
j, k, l	Laufindex
lam	laminar
m	Monolith
max	Maximum
min	Minimum
MT	Stofftransport (engl.: mass transfer)
n	Reaktionsordnung
out	Ausgang (engl.: out)
pf	Längsanströmung (engl.: parallel flow)
pm	Partikel (engl.: particulate matter)
pore	Pore (engl.: pore)
r	radial
reac	Reaktion (engl.: reaction)
reg	Regeneration
RT	Strahlungsaustausch (engl.: radiative transfer)
s	Ruß (engl.: soot)
s, cake	Kuchenruß (engl.: soot cake)

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Zeichen	Bedeutung
s, pore	Porenruß (engl.: soot pore)
sf	Oberfläche (engl.: surface)
sh	Schale (engl.: shell)
st	stöchiometrisch
turb	turbulent
w	Wand (engl.: wall)
wc	Beschichtung (engl.: washcoat)

Griechische Buchstaben

Zeichen	Bedeutung	SI-Einheit
α	Temperaturleitfähigkeit	m^2/s
α	Winkel	rad
α_w	Druckverlustparameter der Darcy-Gleichung	$1/m^2$
β_w	Druckverlustparameter der Forchheimer-Gleichung	$1/m$
χ	Faktor Porenrußabbrand	–
δ	Wandstärke	m
ϵ	Lückengrad	–
ϵ^*	Emissionsgrad (Emissivität)	–
φ	Winkel	rad
η	Wirkungsgrad	–
η	dynamische Viskosität	kg/(m s)
θ	Bedeckungsgrad einer adsorbierten Komponente	–
λ	Verbrennungsluftverhältnis	–
$\widehat{\lambda}$	mittlere freie Weglänge	m
ν	stöchiometrischer Koeffizient	–
ν	kinematische Viskosität	m^2/s
π	Produktionsterm der allgemeinen Bilanzgleichung	W/m^3
ρ	Dichte	kg/m^3
σ	Stefan-Boltzmann-Konstante	$W/(m^2\ K^4)$
$\overline{\sigma}$	Standardabweichung	–
τ	Schubspannung	N/m^2
ξ	Massenanteil	–
ψ	Sauerstoffspeicherfunktion	–
ζ	Widerstandsbeiwert	–

Abkürzungen

Zeichen	Bedeutung
1C, 2C	1-/2-Komponenten-Modell (engl.: 1-/2-component)
ACF	Faktor für die radiale Wärmeleitung (engl.: anisotropic conductivity factor) Verhältnis von radialer zu axialer Wärmeleitfähigkeit
CAE	Simulationstool für die Auslegung (engl.: computer aided engineering)
CCRT®	Catalysed Continuously Regenerating Technology (engl.)
CPSI	Zelldichte (engl.: cells per square inch)
CRT®	Continuously Regenerating Technology (engl.)
CSF	beschichteter Dieselpartikelfilter (engl.: catalysed soot filter)
DOC	Dieseloxidationskatalysator (engl.: diesel oxidation catalyst)
DPF	Dieselpartikelfilter (engl.: diesel particulate filter)
Exp	Experiment, Versuch
GSA	volumenspezifische Oberfläche (engl.: geometric surface area)
HD	höhere Dichte (engl.: higher density)
HDD	Diesel-Lkw (engl.: heavy-duty diesel)
HPSK	stärkerer Porenrußabbrand (engl.: higher porous soot kinetic)
LDD	Diesel-Pkw (engl.: low-duty diesel)
Lkw	Lastkraftwagen
M_Exh	Abgasmassenstrom
NEDC	New European Driving Cycle (engl.)
NEFZ	Neuer Europäischer Fahrzyklus
NUSL	ungleichmäßige Beladung (engl.: non-uniform soot loading)
n_Mot	Motordrehzahl
OFA	Lückengrad (engl.: open frontal area)
Pkw	Personenkraftwagen
PS0	Beladung der Pore = 0 (engl.: soot loading 0)
RL	Last der Rolle
SF	schleichende Strömung (engl.: slip flow)
SFC	Korrekturterm der schleichenden Strömung (engl.: slip-flow correction)
SL	Rußbeladung (engl.: soot loading)
SiC	Siliziumkarbid (engl.: silicon carbide)
Sim	Simulation
SOF	flüchtige Bestandteile der Partikel (engl.: soluble organic fraction)
TIR	Thermoelemente
TWC	Drei-Wege-Katalysator (engl.: three-way catalyst)
WPED	Winkel des Gaspedals

Dimensionslose Kennzahlen

Zeichen	Bedeutung
Kn	Knudsen-Zahl
Nu	Nußelt-Zahl
Pr	Prandtl-Zahl
Re	Reynolds-Zahl

Komponenten

Zeichen	Bedeutung
C	Kohlenstoffatom
Ce	Ceriumatom
CeO_2, Ce^{4+}, Ce_+	vierwertiges Ceriumoxid
Ce_2O_3, Ce^{3+}, Ce_-	dreiwertiges Ceriumoxid
CH_4	Methan
CH_x	Kohlenwasserstoff
C_3H_6	Propen
CO	Kohlenstoffmonoxid
CO_2	Kohlenstoffdioxid
H	Wasserstoffatom
H_2	Wasserstoff
H_2O	Wasser
N_2O	Distickstoffoxid/Lachgas
NO	Stickstoffmonoxid
NO_2	Stickstoffdioxid
NO_x	Stickstoffoxide
O	Sauerstoffatom
O_2	Sauerstoff
SOF	flüchtige Bestandteile der Partikel (engl.: soluble organic fraction)
THC/HC	Summe der Kohlenwasserstoffe (engl.: total hydrocarbon)

Abstract

As regulations become more stringent new exhaust aftertreatment devices have to be developed in order to meet the limits; e. g. with the entry into force of Euro 6 limits diesel applications will be in need of NO_x-storage catalysts or the SCR-technology. Thus the development of new exhaust aftertreatment devices becomes more and more time and cost intensive. The chance of modelling is to shorten this process. A wide range of applications can be simulated in order to reduce the experimental effort. Moreover regarding motor management, simulations can help to develop and to test models for the electronic control unit due to „model-in-the-loop“ and „hardware-in-the-loop“ simulations.

The aim of the present work is to test and improve the existing CAE-tool *IAV-Exhaust*®, which is done in cooperation with the IAV GmbH in Berlin. This CAE-tool is developed for the simulation of exhaust aftertreatment devices, consisting of single and/or air-gap insulated pipes, three-way catalytic converters or diesel oxidation catalysts and/or diesel particulate filters. Thermodynamical validation regarding inner and outer heat transfer has been done in previous work. The focus of the present work is laid upon the chemical validation of three-way catalytic converter and diesel particulate filter models. Therefore different experiments have been done on engine and dynamometer test benches. At first kinetic parameters are tuned to a set of data, consisting of one or several points out of engine operating map. In order to check the applicability of the tool, parameter tuning is followed by a validation at other operating conditions or a test cycle as the NEDC. Does a parameter tuning to one set of data suffices to simulate different operating conditions or constant volume sampling results of an emission test procedure?

Concerning the particulate filter simulations first results showed deviations between measured and computed pressure drop profiles during regeneration. Due to these results model extensions have been implemented resulting in an improvement of not only pressure drop profiles but also soot loading curves. In terms of kinetic parameter tuning a method has been introduced which monitors soot loading during regeneration and is used to fit kinetic parameters. The experimental soot loading curve is gained by balancing C-atoms in combination with a data treatment.

The results obtained of three-way catalytic converter simulations show a good agreement between simulation and experiment. Deviations exist regarding steady-state data at rich conditions (high engine speed and high torque) which is contributed to a lack of modelling. Implementing kinetic submodels, as adsorption of hydrocarbons or water-gas shift and steam-reforming reaction, will perhaps lead to more appropriate results.

Kapitel 1

Einleitung

Der starke Zuwachs an Motorisierung führte in Kalifornien in den Vierzigerjahren des 20. Jahrhunderts zu ersten Bestrebungen, die negativen Auswirkungen auf die Luftqualität zu vermindern. In Europa wurde man in den Sechzigerjahren auf die Luftverschmutzung durch den Verkehr aufmerksam [1]. Die Fokusierung auf dieses Problem wurde durch das für den Menschen unmittelbar schädliche Kohlenmonoxid hervorgerufen, das bereits bei geringen Konzentrationen (200 - 300 ppm) zu Übelkeit, Schwindel und Brechreiz führt und bei hohen Konzentrationen (ein paar 1000 ppm) die Sauerstoffversorgung des Körpers stark beeinträchtigt [2]. Ferner erkannte man die schädliche Wirkung von Stickoxiden und unverbrannten Kohlenwasserstoffen, die u. a. zu saurem Regen und somit zum Baumsterben beitragen. Als Folge wurden 1961 in den Vereinigten Staaten, 1966 in Japan und 1970 in Europa Abgasgrenzwerte für den Straßenverkehr eingeführt.

1.1 Gesetzliche Rahmenbedingungen

Die gesetzlichen Rahmenbedingungen wurden seit ihrer Einführung in den einzelnen Ländern stetig verschärft [1]. Für den Fall Europas zeigt Tab. 1.1 die zeitliche Entwicklung von der Euro 1- bis zur derzeit geltenden Euro 4-Norm. Man erkennt die deutliche Verschärfung der Abgasgesetzgebung von Euro 1- zur Euro 2-Norm. Die Einführung der Euro 3-Norm hingegen lässt eine Abschwächung der Anforderungen vermuten. Jedoch muss bedacht werden, dass bei der Einführung der Euro 3-Norm das Prüfverfahren (Fahrzyklus/Zertifizierungszyklus) verschärft wurde. Im Gegensatz zum vorherigen Fahrzyklus wird ein Warmlauf von 40 s, in dem die Abgasanalyse ausgeschaltet bleibt, weggelassen (siehe Abb. 4.3). Folglich werden sämtliche Kaltstartemissionen miterfasst, was zu einer Erhöhung der Messwerte von 20 % beim Kohlenmonoxid und von ca. 50 % bei den Kohlenwasserstoffen [3] führt. Der leichte Anstieg des Kohlenmonoxidgrenzwertes ist daher nicht verwunderlich,

da es aufgrund des verschärften Prüfverfahrens real zu einer starken Absenkung der erlaubten Abgasemissionen gekommen ist. Die Einführung der Euro 3- und 4-Norm wurde ferner von einer Forderung nach einer verbesserten Kraftstoffqualität begleitet. Der Schwefelgehalt bei Diesel- und Ottokraftstoffen wurde stark herabgesetzt, und für Dieselkraftstoffe wurde eine minimale Cetan-Zahl von 51 eingeführt [1]. Bei der Einführung der Euro 4-Norm bemängelten viele Kritiker, dass die zulässige Partikelmasse nicht weit genug reduziert wurde. Eine Einführung des Dieselpartikelfilters war somit nicht zwingend notwendig, da eine Reduktion der Partikelmasse durch innermotorische Maßnahmen, die zu einer verbesserten Verbrennung führen, erzielt werden konnte [4].

Tab. 1.1: *Abgasgrenzwerte für Pkw*

	Euro 1 91/441/EWG	Euro 2 94/12/EG	Euro 3 98/69/EG	Euro 4 98/69/EG
Typgenehmigung	01.07.1992	01.01.1996	01.01.2000	01.01.2005
Inverkehrbringen	01.01.1993	01.01.1997	01.01.2001	01.01.2006
Otto				
CO in g/km	3,16	2,2	2,3	1,0
HC in g/km	-	-	0,20	0,10
NO_x in g/km	-	-	0,15	0,08
HC + NO_x in g/km	1,13	0,50	-	-
Diesel				
CO in g/km	3,16	1,0	0,64	0,50
HC in g/km	-	-	-	-
NO_x in g/km	-	-	0,50	0,25
HC + NO_x in g/km	1,13	0,70	0,56	0,30
PM in g/km	0,18	0,08	0,05	0,025

Eine weitere Verschärfung der Emissionsgrenzwerte insbesondere für Stickoxide und Feinstaub wurde am 13. Dezember 2006 vom Europäischen Parlament verabschiedet. Die Einführung der Euro 5-Norm am 1. September 2009 und die damit verbundene Reduktion des Partikelgrenzwertes um 80 % von derzeit 25 auf 5 mg/km wird eine Vermeidung des Dieselpartikelfilter nicht mehr möglich machen. Die Euro 6-Norm wird zusätzlich eine starke Reduktion der Stickoxide bei Dieselfahrzeugen mit sich bringen und fünf Jahre nach der Euro 5-Norm eingeführt [5]. Folglich wird mit Einführung der Euro 6-Norm für Dieselfahrzeuge auch eine gesonderte Abgasnachbehandlung der Stickoxide nötig sein. Der Fokus der Euro 5- und Euro 6-Norm, eine Verschärfung hauptsächlich für Dieselfahrzeuge, ist deutlich zu erkennen. Dieses ist u. a. auch durch die steigende Zahl an Neuzulassungen (in Deutschland ca.

40 % [4]) motiviert. Laut Kraftfahrtbundesamt stieg der Anteil an Dieselfahrzeugen im Pkw-Bereich von 14 % im Jahre 2000 auf 22 % im Jahre 2006 an [6].

Tab. 1.2: *Auswirkung der Euro 5- und 6-Norm auf die Abgasgrenzwerte für Pkw*

	Euro 5	Euro 6
Otto		
NO_x in g/km	0,06	0,06
Diesel		
NO_x in g/km	0,18	0,08
HC + NO_x in g/km	0,230	0,170
PM in g/km	0,005	0,005

Bedingt durch die Verschärfung der Abgasnormen ist die Automobilindustrie gezwungen, sowohl die Verbrennung weiter zu optimieren als auch sich nachgeschaltet dem Thema der Abgasnachbehandlung stärker zu widmen. Im Bereich der Ottomotoren reichen z. B. einfache Abgasanlagen mit Drei-Wege-Katalysatoren in Unterbodenlage seit der Einführung von Euro 3 und Euro 4 aufgrund des verschärften Prüfzyklus meist nicht mehr aus, um die geforderten Grenzwerte einzuhalten [7]. Da mit dem neuen Prüfverfahren auch die Zeit des Kaltstarts – die ersten 30 - 200 s – berücksichtigt wird, in der ca. 50 % der gesamten Emissionen des Zyklus anfallen [8], steigt die Komplexität der Abgasanlagen weiter an. Es muss versucht werden, durch passive und aktive Abgasnachbehandlungskonzepte ein schnelles Aufheizen des Katalysators und damit ein schnelles Einsetzen des Light-Offs (Zeitpunkt 50 %-iger Konversion) zu ermöglichen. Typische passive Anlagenkonzepte sind z. B. motornahe Hauptkatalysatoren, Unterbodenkatalysatoren mit motornahem Vorkatalysator und Speicherkatalysatoren wie der HC-Speicherkatalysator [9]. Ferner können höhere Umsätze durch größere Katalysatoren bzw. erhöhte Edelmetallbeladungen erzielt werden, was jedoch zu erhöhten Kosten führt. Als weitere Möglichkeit zur Steigerung der Konversionsraten ist die Weiterentwicklung hochentwickelter Beschichtungen/Washcoats zu nennen [10–15].

Bei der Weiterentwicklung von Abgasnachbehandlungsanlagen gewinnt die Simulation immer mehr an Bedeutung. Mit ihr lassen sich schnell verschiedenste Konzepte wie z. B. Lage und Größe des Katalysators untersuchen. Außerdem können durch „Hardware-In-The-Loop“ (HIL – z. B. closed-loop Simulation von Abgasanlagen-/Motormodellen und Steuergeräten) bzw. „Model-In-The-Loop“ (MIL – z. B. closed-loop Simulation von Abgasanlagen-/Motormodellen und Funktionen/Modellen für das Steuergerät im Entwicklungsprozess) Regelstrategien zur Bedatung der Steuergeräte entwickelt und getestet werden. Die Simulation wird das Vermessen verschiedener Abgasnachbehandlungssysteme auf Rollen- bzw. Motorprüfständen nicht

verdrängen, kann jedoch unterstützend zur Untersuchung einzelner Phänomene hinzugezogen werden. Zudem ist eine Verringerung der Anzahl der Messungen möglich.

1.2 Stand der Forschung

Begonnen wurde mit der Modellierung von monolithischen Katalysatoren bereits Ende der Sechzigerjahre, wobei sich erste Arbeiten mit der Beschreibung des Aufheizverhaltens beschäftigten. Darauf aufbauend wurden die Modelle um Impuls- und Stofftransportbilanzen wie auch chemische Reaktionen erweitert. Eine detaillierte Beschreibung der zeitlichen Entwicklung der Katalysatormodellierung ist in den Veröffentlichungen von Depcik und Assanis [16], welche die Unterschiede der einzelnen Modelle anhand von Gleichungen und Ergebnissen diskutieren, und Koltsakis et al. [17] zu finden.

In den letzten Jahren sind somit immer detailliertere Beschreibungen der chemischen Reaktionen und Stofftransportvorgänge in die bestehenden Modelle implementiert worden, wohingegen bei den Energiebilanzen und dem Wärmeübergang kaum Änderungen zu verzeichnen sind. Die Einführung neuer Katalysatortypen und hochentwickelter Washcoats führte ebenfalls zu immer mehr Modellerweiterungen. Beispielhaft sind die Modellierung des Sauerstoffspeichers [17, 18], Berücksichtigung der „Water-Gas-Shift"-Reaktion [18] oder der „Steam-Reforming"-Reaktion [17], die Adsorption von Kohlenwasserstoffen bei Dieseloxidationskatalysatoren in der Kaltstartphase [19], oder auch NO_x-Speicherkatmodelle [20–22] und die selektive katalytische Reduktion von NO_x mit Ammoniak (SCR-Katalysator) zu nennen. Der Untersuchung von SCR-Katalysatoren haben sich vor allem Tronconi et al. [23, 24] und Koebel et al. [25–31] gewidmet. Beide Arbeitsgruppen beschäftigen sich mit der Modellierung dieser Katalysatorvariante und untersuchen anhand von Messungen einzelne Phänomene mit deren Hilfe immer detailliertere Reaktionsmechanismen entwickelt werden können. Zu erwähnen ist, dass die Reaktionsmechanismen der Oxidation der Kohlenwasserstoffe und des Kohlenmonoxids sowie der Reduktion der Stickoxide fast aller monolithischen Katalysatormodelle auf den Arbeiten von Voltz et al. [32] – Oxidationsreaktionen – und von Subramaniam und Varma [33] – Reduktionsreaktion – basieren. Die Reaktionen werden hier nicht durch Elementarreaktionen, sondern durch eine Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik beschrieben. Diese besteht aus globalen Reaktionen der betrachteten Komponenten und einem Verhinderungsterm, der die gegenseitige Behinderung bei der Ad-/Desorption beschreibt.

Die Modellierung von Partikelfiltern begann in den frühen Achtzigerjahren. Als Grundstein der Partikelfiltermodellierung sind die Arbeiten von Bissett [34] und Bissett und Shadman [35] zu nennen, auf denen heutige Modelle noch immer aufbauen.

Eine detaillierte Beschreibung der zeitlichen Entwicklung ist in den Veröffentlichungen von Law et al. [36] und Bogdanic et al. [37] zu finden. Ausgehend von den grundlegenden Modellen wird durch Modellerweiterungen wie der Berücksichtigung der partiellen Oxidation von Ruß [38], der Implementierung des CRT®-Effekts (passive Regeneration durch NO_2) [39, 40] oder der Implementierung eines erweiterten Reaktionsmechanismus [36] eine immer größere Modelltiefe erreicht.

Unterschiede bei der Simulation von monolithischen Katalysatoren und Partikelfiltern sind nicht nur in den Modellen zu finden, sondern auch in der Art der Parametrierung. Für Partikelfilter führen Koltsakis und Stamatelos [38] eine Anpassung der kinetischen Parameter durch, wohingegen die Reaktionsgleichungen von Law et al. [36] auf fundamentalen kinetischen Parametern (Labordaten) beruhen. Auch bei der Modellierung von monolithischen Katalysatoren wird oft eine Anpassung der kinetischen Parameter vorgenommen. Die verwendeten „lumped-parameter"-Modelle spiegeln im Gegensatz zu den kinetischen Parametern der Partikelfilter nicht nur die eigentliche Reaktion wider, sondern beinhalten auch eine fehlende Modelltiefe wie nicht explizit modellierte Ad-/Desorptionsvorgänge bzw. Porendiffusion.

1.3 Ziel dieser Arbeit

Die thermodynamische Validierung der Modelle verschiedener Katalysatoren (Drei-Wege-Katalysator, Dieseloxidationskatalysator, mit und ohne Washcoat, mit und ohne Edelmetallbeladung) aber auch von Einfachrohren ist bereits in früherer Arbeit durchgeführt worden [41].

Im Rahmen der folgenden Untersuchung wird der Fokus auf die chemische Validierung des Drei-Wege-Katalysators und die Validierung der Teilmodelle des Dieselpartikelfilters gelegt. Als Vorarbeit wurde bereits der Dieseloxidationskatalysator chemisch validiert. Ein Problem während der Messungen – eine HC-Vergiftung der Abgasanalyse führte zu falschen HC-Molanteilen – verringerte die verwertbaren Daten enorm, so dass letztendlich nur eine erste Anpassung der kinetischen Parameter, jedoch keine Validierung möglich war. Aufgrund des beschriebenen Problems während der Messungen ist eine qualitative Aussage anhand der Ergebnisse nicht möglich. Die Daten für den Dieseloxidationskatalysator dienten somit als erster Rechnungs-/Messungsvergleich, um mit Hilfe der Ergebnisse letzte Fehler bei den Modellen zu beseitigen.

Allgemein gliedert sich die Arbeit in zwei große Bereiche: monolithische Katalysatoren und Dieselpartikelfilter. Bei Dieselpartikelfiltern handelt es sich zwar auch um Monolithen, entweder aus einem Stück gefertigt oder aus Teilstücken geklebt, aber die Art der Durchströmung unterscheidet sich von der eines monolithischen

Katalysators. Bedingt durch die alternierend offenen und geschlossenen Kanäle wird die Gasströmung beim Dieselpartikelfilter zu einer Durchströmung der Wand gezwungen. Beim monolithischen Katalysator hingegen findet keine Durchströmung der Wand statt. Dieser Unterschied führt zu folgendem Aufbau der Arbeit:

- Kapitel 2 beginnt mit einer Beschreibung des prinzipiellen Aufbaus eines monolithischen Katalysators bestehend aus Trägermaterial, Washcoat, Beschichtung, Isolierung und der Schale (Canning). Im Anschluss werden die Bilanzgleichungen für Energie-, Impuls- und Stofftransport hergeleitet. Darauf aufbauend werden die Reaktionsgleichungen für den Drei-Wege-Katalysator und Dieseloxidationskatalysator und Teilmodelle der jeweiligen Katalysatorvariante dargestellt: für den Drei-Wege-Katalysator der Sauerstoffspeicher und für den Dieseloxidationskatalysator die Reduktion der flüchtigen Bestandteile des Rußes.
- Kapitel 3 beschäftigt sich vorab mit der Vorstellung der verschiedenen Partikelfiltervarianten und ihrer Unterschiede, der Beschreibung der Abscheidemechanismen und einer Diskussion zur Wahl einer geeigneten Rußdichte. Anschließend werden die Modelle anhand einer detaillierten Herleitung der Bilanzgleichungen für Energie-, Impuls- und Stofftransport vorgestellt. Aufgrund der Ergebnisse aus Kapitel 5 werden Modellerweiterungen diskutiert, die zu einer möglichen Verbesserung der Simulationsergebnisse führen könnten.
- In den Kapiteln 4 und 5 werden die Experimente für die Validierung der Modelle wie auch die Rechnungs-/Messungsvergleiche vorgestellt. Beide Kapitel sind wie folgt gegliedert:
  - Versuchsaufbau und Versuchsdurchführung
  - Anpassung der Modelle/Teilmodelle
    - Bestimmung des Sauerstoffspeichers (TWC)
    - Bilanzierung des Rußes (DPF)
    - Parametrierung des Druckverlustmodells (DPF)
    - Anpassung der kinetischen Parameter (TWC nur Frequenzfaktoren und DPF Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien)
  - Validierung
    - Vorausberechnung weiterer Lastpunkte (DPF)
    - Simulation eines Zertifizierungszyklus (TWC); in dieser Arbeit die Simulation des „Neuen Europäischen Fahrzyklus“ – NEFZ
  - Modellerweiterungen und deren Einfluss auf die Simulationsergebnisse (DPF)
  - Sensitivitätsanalysen

    - ∗ Diskussion zur Parameteranpassung und Reproduzierbarkeit der Ergebnisse (TWC)
    - ∗ Diskussion zur Quantifizierung der Güte der Simulation (DPF)
  - Fazit

- Abschließend wird in Kapitel 6 eine Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse, ein Fazit und ein Ausblick auf weitere Tätigkeiten zur Verbesserung der Modellgüte präsentiert.

Kapitel 2

Monolithische Katalysatoren

2.1 Einleitung

Der Katalysator einer Abgasanlage besteht aus insgesamt drei Teilen:

- dem Monolithen, bestehend aus Katalysatorträger, Washcoat und Beladung,
- der Schale (Metallgehäuse), in welcher der Katalysatorträger gelagert wird,
- der Isolierung, die zwischen der Schale und dem Monolithen liegt.

Die eigentliche Abgasnachbehandlung und somit Umsetzung der Schadstoffe geschieht im Monolithen. Eine Charakterisierung des Monolithen, des Washcoats und der Zusätze wird in Abschn. 2.1.1 und 2.1.2 vorgenommen.

Zum Einbau eines Monolithen in eine Abgasanlage wird ein Metallgehäuse verwendet, in dem der Katalysatorträger stabil gelagert wird. Dieses Einpacken des Monolithen zur bruchsicheren Lagerung bezeichnet man als Canning. Zum Canning gehört auch die Wahl des richtigen Ein- und Auslasstrichters, die für eine gute Anströmung des Monolithen verantwortlich sind. Um mit Hilfe des Cannings auch eine thermische Isolation zu gewährleisten, wird zwischen den Katalysatorträger und das Metallgehäuse eine keramische Isolationsmatte gelegt. Diese Isolationsmatte wirkt nicht nur thermisch isolierend, sondern dient auch der bruchfesten Lagerung des Monolithen. Thermischer Vorteil der Isolierung ist eine Minimierung der Wärmeverluste, die sowohl das Light-Off-Verhalten verbessert als auch ein schnelles Auskühlen in kurzen Abstellphasen verhindert. Ferner kann mit Hilfe der Isolierung die Vorgabe der auf ca. 450°C begrenzten Oberflächentemperatur des Metallgehäuses eingehalten werden, um Schädigungen an benachbarten Teilen bzw. der Fahrbahn zu verhindern [42].

Der Aufbau der veschiedenen Katalysatoren für den Otto- bzw. Dieselmotorbereich ist prinzipiell gleich. Unterschiede sind bei den verwendeten Washcoats, Edelmetallen und sonstigen Zusätzen vorhanden, durch die eine Anpassung an die jeweiligen

Anforderungen erfolgt. Im Falle der monolithischen Katalysatoren wird zurzeit zwischen fünf Katalysatorarten unterschieden:

1. Drei-Wege-Katalysator – Oxidation von THC und CO, Reduktion von NO,
2. Dieseloxidationskatalysator – Oxidation von THC und CO und, falls gefordert, auch eine erhöhte Oxidation von NO zu NO_2 (siehe Abschn. 3.1.1),
3. NO_x-Speicherkatalysatoren – Adsorption von NO_x in mageren (überstöchiometrische Verbrennung – $\lambda > 1$) und Reduktion der eingelagerten NO_x in fetten (unterstöchiometrische Verbrennung – $\lambda < 1$) Betriebszuständen,
4. Selektive katalytische Reduktion – Reduktion von NO_x mit Ammoniak,
5. HC-Speicherkatalysator – Adsorption der THC bis zum Einsetzen des Light-Offs.

2.1.1 Charakterisierung monolithischer Katalysatoren

Der monolithische Katalysator besteht aus einem Träger, der entweder aus einer Keramik (Cordierit mit der Summenformel $2\,MgO \cdot 2\,Al_2O_3 \cdot SiO_2$) oder einer gewickelten Metallfolie besteht. Der Anteil der in der Automobilindustrie verwendeten metallischen Monolithen liegt dabei lediglich bei ca. 7 % (Jahr 1999) [43]. Beschrieben wird der Katalysatorträger durch die äußere Form, das Volumen, die Zelldichte, die Wandstärke und die Zellform.

Die Zellform keramischer Träger reicht von quadratisch über hexagonal bis hin zu dreieckigen Zellen, wobei Katalysatorträger in Serienfahrzeugen überwiegend quadratische Zellen aufweisen. Bei metallischen Trägern hingegen ist die Zellform sinusoidal. Die Zelldichte eines Trägers wird in Zellen/inch^2 (CPSI – **C**ells **P**er **S**quare **I**nch) angegeben und liegt zwischen 200 und 1200 CPSI. Wandstärken typischer Katalysatoren reichen von 2 bis 10 mil (1 mil = 1/1000 inch = 25,4 μm) [43].

$$CPSI = \frac{\text{N Zellen}}{\text{Fläche von N Zellen}} = \frac{\text{1 Zelle}}{\text{Fläche von 1 Zelle}} \tag{2.1}$$

Wichtige Kenngrößen eines Katalysatorträgers sind der Lückengrad ϵ, auch OFA (**O**pen **F**rontal **A**rea) genannt, und die spezifische Oberfläche a, auch GSA (**G**eometric **S**urface **A**rea) genannt. Berechnet werden diese Kenngrößen über den hydraulischen Durchmesser d_h einer Zelle und die Wandstärke δ_w wie folgt:

$$\epsilon_{cat} = \frac{d_h^2}{(d_h + \delta_w)^2} \ , \tag{2.2}$$

$$a_{cat} = \frac{4\,d_h}{(d_h + \delta_w)^2} \ . \tag{2.3}$$

Typische Werte für den Lückengrad eines Katalysatorträgers liegen zwischen 75 und 95 % und für die spezifische Oberfläche zwischen 2,5 und 5 m^2/l.

2.1.2 Washcoat – Edelmetalle

Der Washcoat – ein typisches Trägeroxid ist γ-Al_2O_3 – wird auf den Katalysatorträger aufgebracht und sorgt damit für eine Vergrößerung der spezifischen Oberfläche. Typische Werte der massenspezifischen Oberfläche liegen bei 50 - 200 m^2/g, so dass eine Washcoatbeladung von 100 g/l Substrat zu einer Oberfläche von 5000 - 20000 m^2/l führt. Verglichen zu der geometrischen Oberfläche eines häufig verwendeten Katalysators von ca. 2,8 m^2/l (siehe Tab. A.6) ergibt sich für die Oberflächenvergrößerung ein Faktor von 2000 - 7000. Durch das Auftragen des Washcoats, der eine Beschichtungsdicke von ca. 20 - 30 μm besitzt, verkleinert sich der Lückengrad um 8 - 9 % und die spezifische Oberfläche um ca. 4 - 5 % [43].

Dem Washcoat werden aktive Komponenten hinzugefügt, die entweder als Katalysator oder Speicherkomponente wirken. Verwendet werden Edelmetalle (Pt, Pd, Rh) zur Katalysierung der Oxidations- und Reduktionsreaktionen, Selten-Erd-Oxide (z. B. CeO_2) u. a. auch in Verbindung mit weiteren Keramiken (z. B. ZrO_2), Zeolithe (Molekularsiebe) wie auch Alkali- und Erdalkalimetalle (z. B. Ba) zur Speicherung von Sauerstoff, Kohlenwasserstoffen und Stickoxiden. Eine gesonderte Rolle nimmt die selektive katalytische Reduktion von Stickoxiden mit Ammoniak ein bei der kein Edelmetall als Katalysator, sondern Vanadiumoxid (V_2O_5) zur Begünstigung der Reaktion von Ammoniak mit Stickoxiden verwendet wird [1, 44].

Eine typische Edelmetallbeladung liegt im Bereich von 1 - 10 g/l. Dabei wird von den Herstellern der Beschichtung immer die Gesamtmenge an Edelmetallen in g/ft^3 und das Verhältnis der Edelmetalle zueinander in der Form Pt:Pd:Rh [45] (z. B. hier verwendet 0:6:1) angegeben. Die Edelmetalle Platin und Palladium haben eine starke Oxidationskraft, wohingegen Rhodium die Reduktion von Stickstoffmonoxid mit Kohlenstoffmonoxid fördert [43].

2.2 Bilanzgleichungen und Modelle

Bei den Transportgleichungen monolithischer Katalysatoren sind keine Unterschiede vorhanden. Die Unterschiede kommen lediglich durch die verschiedenen Reaktionen zustande. Somit folgt zuerst eine allgemeine Herleitung der Transportgleichungen von Masse, Impuls und Energie für den Wabenrohrreaktor (monolithischer Katalysator). Die Herleitung der Energiebilanz wird hierbei in stark verkürzter Form dargestellt. Für den komplizierteren Fall des Dieselpartikelfilters (Abschn. 3.2.6) wird diese Bilanz ausführlich erläutert. Ferner wird die Impulsbilanz in stark vereinfachter Form unter Verwendung von Widerstandsbeiwerten aus empirischen Gleichungen gelöst. Für die Darstellung der folgenden Bilanzgleichungen wird sowohl in diesem Kapitel als auch in Kap. 3 die Einsteinsche Summenkonvention verwendet.

2.2.1 Kontinuitätsgleichung

Die allgemeine Kontinuitätsgleichung lautet [46]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial\, \rho\, w_i}{\partial x_i} = 0\ . \tag{2.4}$$

Unter der Voraussetzung, dass kein Gasaustausch zwischen den Kanälen vorhanden ist, ergibt sich folgende vereinfachte Form der Kontinuitätsgleichung in 1-dimensionaler Form:

$$\frac{\partial \rho_\mathrm{g}}{\partial t} + \frac{\partial\, \rho_\mathrm{g}\, w_z}{\partial\, z} = 0\ . \tag{2.5}$$

2.2.2 Komponentenbilanz

Die allgemeine Form der integralen Komponentenbilanz einer Komponente j lautet:

$$\int\limits_\mathrm{V} \frac{\partial \rho_j}{\partial t}\,\mathrm{d}V + \int\limits_{\partial V} \rho_j\, w_i\, n_i\,\mathrm{d}A + \int\limits_{\partial V} \dot{m}^\mathrm{D}_{j,i}\, n_i\,\mathrm{d}A = \int\limits_V \rho_j\, \pi_j\,\mathrm{d}V\ , \tag{2.6}$$

mit diffusivem Massenstrom dargestellt über das Ficksche Gesetz $\dot{m}^\mathrm{D}_{j,i} = -D_j\,\rho\,\frac{\partial \xi_j}{\partial x_i}$ und $\rho_j = \rho\,\xi_j$.

Folgende vereinfachende Annahmen werden getroffen:

- keine homogenen Reaktionen in der Gasphase,
- sämtliche Reaktionen finden an der Wandoberfläche statt,
- Rotationssymmetrie $\Rightarrow \partial/\partial\varphi = 0$,
- Konvektion $\ll$ Diffusion in radialer Richtung,
- Diffusion $\ll$ Konvektion in axialer Richtung.

Unter Berücksichtigung der Annahmen vereinfacht sich Gl. 2.6 zu:

$$\int\limits_V \frac{\partial \rho_\mathrm{g}\,\xi_{\mathrm{g},j}}{\partial t}\,\mathrm{d}V - \int\limits_{A_z} \rho_\mathrm{g}\,\xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\,\mathrm{d}A + \int\limits_{A_{z+\mathrm{d}z}} \rho_\mathrm{g}\,\xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\,\mathrm{d}A + \int\limits_{A_\mathrm{sf}} \dot{m}^\mathrm{D}_{j,r}\,\mathrm{d}A = 0\ . \tag{2.7}$$

Als weitere Vereinfachung wird der radiale Stofftransport über Stoffübergangskoeffizienten beschrieben, die aus empirischen Gleichungen ermittelt werden. Mit der Annahme der Analogie zwischen Wärme- und Stoffübergang [47] beträgt die Sherwood-Zahl für kreisrunde Kanäle 3,66 [48] und für quadratische 2,89 [49]. Die Integration des radialen Stofftransports kann somit wie folgt dargestellt werden:

$$\int\limits_{A_\mathrm{sf}} \dot{m}^\mathrm{D}_{j,r}\,\mathrm{d}A = h_{\mathrm{MT,conv},j}\ (\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j})\ \mathrm{d}A_\mathrm{sf}\ , \tag{2.8}$$

mit $h_{\mathrm{MT,conv},j} = \frac{Sh\, D_j}{L_0}$ [47] und dem hydraulischen Kanaldurchmesser $d_{\mathrm{h,ch}}$ als charakteristischer Länge L_0.

Unter der Annahme einer konstanten Geschwindigkeit auf dem Querschnitt und mit Gl. 2.8 erhält man für die Stoffbilanz in der Gasphase folgenden Ausdruck:

$$\frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}}{\partial t}\, \mathrm{d}V - \left(\rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\, A\right)_z + \left(\rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\, A\right)_{z+\mathrm{d}z} + h_{\mathrm{MT,conv},j}\, \left(\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}\right)\, \mathrm{d}A_\mathrm{sf} = 0\ . \tag{2.9}$$

Mit Hilfe der Taylorreihe wird die Bilanz an einer Stelle z entwickelt und in die differentielle Form überführt:

$$\left(\rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\, A\right)_{z+\mathrm{d}z} = \left(\rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\, A\right)_z + \frac{\mathrm{d}\left(\rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z\, A\right)_z}{\mathrm{d}z}\, \mathrm{d}z\ . \tag{2.10}$$

Mit $\mathrm{d}V = A\, \mathrm{d}z$ und $\mathrm{d}A_\mathrm{sf}/\mathrm{d}V_\mathrm{g} = a_\mathrm{g}$ ergibt sich letztendlich folgender Ausdruck:

$$\frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}}{\partial t} + \frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z}{\partial z} = -a_\mathrm{g}\, h_{\mathrm{MT,conv},j}\, \left(\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}\right)\ . \tag{2.11}$$

Eine Homogenisierung ist für diesen Fall nicht notwendig, wird jedoch durchgeführt, da dadurch bekannte Katalysatorgrößen wie die spezifische Oberfläche a_cat verwendet werden können. Die spezifische Oberfläche bezogen auf das Gasvolumen a_g wird mit Hilfe des Lückengrades des Katalysators in die spezifische Oberfläche des Katalysators a_cat umgerechnet:

$$\epsilon_\mathrm{cat}\, \frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}}{\partial t} + \epsilon_\mathrm{cat}\, \frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, \xi_{\mathrm{g},j}\, w_z}{\partial z} = -a_\mathrm{cat}\, h_{\mathrm{MT,conv},j}\, \left(\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}\right)\ , \tag{2.12}$$

mit $a_\mathrm{cat} = a_\mathrm{g}\, \epsilon_\mathrm{cat}$.

Durch folgende Umformung kann eine Redundanz bezüglich der Kontinuitätsgleichung beseitigt werden und Gl. 2.12 weiter vereinfacht werden:

$$\epsilon_\mathrm{cat}\, \rho_\mathrm{g} \left(w_z\, \frac{\partial \xi_{\mathrm{g},j}}{\partial z} + \frac{\xi_{\mathrm{g},j}}{\partial t}\right) + \epsilon_\mathrm{cat}\, \xi_{\mathrm{g},j} \overbrace{\left(\frac{\partial \rho_\mathrm{g}}{\partial t} + \frac{\partial \rho_\mathrm{g}\, w_z}{\partial z}\right)}^{\text{Gl. 2.5}} = -a_\mathrm{cat}\, h_{\mathrm{MT,conv},j}\, \left(\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}\right)\ . \tag{2.13}$$

Zur weiteren Vereinfachung kann die Zeitableitung gegenüber der örtlichen aufgrund der hohen Massenströme vernachlässigt werden. Die endgültige Komponentenbilanz in der Gasphase lautet dann:

$$\epsilon_\mathrm{cat}\, \rho_\mathrm{g}\, w_z\, \frac{\partial \xi_{\mathrm{g},j}}{\partial z} = -a_\mathrm{cat}\, h_{\mathrm{MT,conv},j}\, \left(\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}\right)\ . \tag{2.14}$$

Die Verknüpfung zwischen der Komponentenbilanz in der Gasphase und den heterogenen Reaktionen an der Wandoberfläche wird mit der in Gl. 2.15 dargestellten

Randbedingung, dem Ergebnis einer quasistationären Bilanz an der Phasengrenzfläche, erreicht:

$$h_{\mathrm{MT,conv},j}\ (\rho_{\mathrm{g},j} - \rho_{\mathrm{w},j}) = \tilde{M}_j \sum_k \dot{r}_{j,k}\ , \tag{2.15}$$

mit k als den jeweiligen Reaktionen, an denen die Komponente beteiligt ist.

Die im Programm implementierten Bilanzen sind für das Teilchenbezugssystem dargestellt. Die Umrechnung vom Massen- auf das Teilchenbezugssystem erfolgt mit Hilfe der Molmassen. Eine Konzentrationsänderung durch molverändernde Reaktionen wird aufgrund des geringen Anteils der Schadstoffe am gesamten Abgas (ca. 1 % [50]) nicht berücksichtigt. Ferner kann in guter Näherung ein schneller Temperaturausgleich zwischen Monolith und Gasphase angenommen werden. Mit diesen Annahmen vereinfacht sich die Komponentenbilanz wie folgt [16]:

$$\epsilon_{\mathrm{cat}}\, w_z\, \frac{\partial \tilde{x}_{\mathrm{g},j}}{\partial z} = -a_{\mathrm{cat}}\, h_{\mathrm{MT,conv},j}\ (\tilde{x}_{\mathrm{g},j} - \tilde{x}_{\mathrm{w},j})\ . \tag{2.16}$$

2.2.3 Impulsbilanz

Um den Druckverlust eines Wabenrohrreaktors zu bestimmen, wird die Impulsbilanz nicht explizit gelöst, sondern ein Widerstandsgesetz verwendet. Dieses beinhaltet die Annahme, dass der gesamte Druckverlust durch Reibung verursacht wird:

$$\Delta p_{\mathrm{ch}} = \zeta_{\mathrm{ch}}\, \frac{\dot{m}_{\mathrm{g}}^2}{2\,\rho_{\mathrm{g}}}\, \frac{L_{\mathrm{ch}}}{d_{\mathrm{h,ch}}}\ . \tag{2.17}$$

Der Widerstandsbeiwert für den Kanal aus Gl. 2.17 berechnet sich wie folgt:

$$\zeta_{\mathrm{ch}} = \frac{4\, c_{\mathrm{f,ch}}}{Re}\ , \tag{2.18}$$

mit einem Reibungsbeiwert $c_{\mathrm{f,ch}}$ von 16 für kreisrunde Kanäle und 14,23 für quadratische Kanäle [45] für den hier geltenden Fall einer laminaren Strömung.

Für die Stoßverluste am Ein- und Austritt werden die empirischen Gleichungen

$$\Delta p_{\mathrm{in}} = \zeta_{\mathrm{in}}\, \frac{\dot{m}_{\mathrm{g}}^2}{2\,\rho_{\mathrm{g}}} \quad \text{mit} \quad \zeta_{\mathrm{in}} = 1,08 - 0,415\,\epsilon_{\mathrm{cat}} \tag{2.19}$$

und

$$\Delta p_{\mathrm{out}} = \zeta_{\mathrm{out}}\, \frac{\dot{m}_{\mathrm{g}}^2}{2\,\rho_{\mathrm{g}}} \quad \text{mit} \quad \zeta_{\mathrm{out}} = (1 - \epsilon_{\mathrm{cat}})^2 \tag{2.20}$$

verwendet [45].

2.2.4 Energiebilanz

Eine ausführliche Herleitung der Energiebilanz wird für den weitaus komplizierteren Fall des Dieselpartikelfilters durchgeführt (Abschn. 3.2.6). Für den Fall der monolithischen Katalysatoren werden vorab Annahmen getroffen, die von einer allgemeinen Energiebilanz über eine Bilanz der inneren Energie bis hin zur hier verwendeten Enthalpiebilanz führen.

Gasphase

Für die Gasphase in den Kanälen wird erneut eine 2-dimensionale Bilanz mit Hilfe von radialen Übergangskoeffizienten in eine quasi 1-dimensionale überführt. Ausgangspunkt ist die allgemeine Form der integralen, inneren Energiebilanz [46]:

$$\int_V \frac{\partial \rho\, u}{\partial t} \mathrm{d}V + \int_{\partial V} (\rho\, u\, w_i + q_i)\, n_i\, \mathrm{d}A = \int_V t_{ji} \frac{\partial w_j}{\partial x_i} \mathrm{d}V + \int_V \rho\, z\, \mathrm{d}V \ . \tag{2.21}$$

Folgende vereinfachende Annahmen werden getroffen:

- Redundanz bezüglich der Kontinuitätsgleichung wird beseitigt,
- Vernachlässigung von Druckänderungen,
- Axiale Diffusion $\ll$ axiale Konvektion,
- Radiale Konvektion $\ll$ radiale Diffusion,
- Vernachlässigung des Einflusses von Schubspannungen (Spannungstensor),
- radiale Wärmeleitung in integrierter Form
  $\Rightarrow$ Verwendung von Wärmeübergangskoeffizienten.

Unter Verwendung dieser Annahmen und mit einer Überführung der integralen Bilanz mit Hilfe der Taylorreihe in eine differentielle Form ergibt sich folgende 1-dimensionale Enthalpiebilanz:

$$\rho_\mathrm{g} \frac{\partial h_\mathrm{g}}{\partial t} + \rho_\mathrm{g}\, w_z \frac{\partial h_\mathrm{g}}{\partial z} = -a_\mathrm{g}\, h_\mathrm{HT,conv}\, (T_\mathrm{g} - T_\mathrm{m}) \ , \tag{2.22}$$

mit $a_\mathrm{g} = \frac{A_\mathrm{sf}}{V_\mathrm{g}}$.

Die zeitliche Ableitung wird gegenüber der örtlichen Ableitung aufgrund hoher Massenströme vernachlässigt. Ferner wird die Gleichung homogenisiert, was eine Verwendung typischer Katalysatorgrößen (GSA/a_{cat}) ermöglicht. Zur vereinfachenden Temperaturdarstellung wird die Enthalpie durch die kalorische Zustandsgleichung $\mathrm{d}h = c_{\mathrm{p}}\mathrm{d}T$ ersetzt:

$$\epsilon_{\mathrm{cat}}\,\dot{m}_{\mathrm{g}}\,c_{\mathrm{p,g}}\,\frac{\partial T_{\mathrm{g}}}{\partial z} = -a_{\mathrm{cat}}\,h_{\mathrm{HT,conv}}\,\left(T_{\mathrm{g}} - T_{\mathrm{m}}\right)\ , \tag{2.23}$$

mit dem Kanalmassenstrom $\dot{m}_{\mathrm{g}} = \rho_{\mathrm{g}}\,w_z$. Der Wärmeübergangskoeffizient $h_{\mathrm{HT,conv}}$ berechnet sich analog zum Stoffübergangskoeffizienten $h_{\mathrm{MT,conv}}$, mit einer Nußelt-Zahl $Nu = \frac{h_{\mathrm{HT,conv}}\,d_{\mathrm{h}}}{k}$ [47] von 3,66 [48] für kreisrunde und 2,89 [49] für quadratische Kanäle.

Festkörper

Die Bilanzierung des Festkörpers wird 2-dimensional durchgeführt. Die Wärmeleitung wird sowohl in axialer wie auch in radialer Richtung berücksichtigt. Da die Bilanzgleichungen nicht für jeden Kanal gelöst werden, sondern nur an repräsentativen Punkten, muss bei der Festkörperbilanzierung homogenisiert werden. Der Grund hierfür ist das wechselweise Auftreten von Kanal (Gasphase) und Kanalwänden (Festkörper). Um die Wärmeleitung in radialer Richtung zu berücksichtigen, muss eine effektive (homogenisierte) radiale Wärmeleitfähigkeit verwendet werden:

$$\begin{aligned}&\left(\left(1-\epsilon_{\mathrm{cat}}^{0}\right)\,\rho_{\mathrm{m}}\,c_{\mathrm{p,m}} + \left(\epsilon_{\mathrm{cat}}^{0} - \epsilon_{\mathrm{cat}}\right)\,\rho_{\mathrm{wc}}\,c_{\mathrm{p,wc}}\right)\,\frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial t} = \left(1-\epsilon_{\mathrm{cat}}\right)\,\frac{1}{r}\,\frac{\partial}{\partial r}\left(k_{\mathrm{m,r}}\,r\,\frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial r}\right)\\ &+ \left(1-\epsilon_{\mathrm{cat}}\right)\,\frac{\partial}{\partial z}\left(k_{\mathrm{m,ax}}\,\frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial z}\right) + a_{\mathrm{cat}}\,h_{\mathrm{HT,conv}}\,\left(T_{\mathrm{g}} - T_{\mathrm{m}}\right) + \dot{q}_{\mathrm{R}}^{*}\ ,\end{aligned} \tag{2.24}$$

mit $\dot{q}_{\mathrm{R}}^{*}$ als der auf das gesamte Katalysatorvolumen bezogenen Reaktionswärme. Die für die Homogenisierung notwendige effektive radiale Wärmeleitfähigkeit $k_{\mathrm{m,r}}$ kann entweder durch Messungen genau bestimmt oder anhand einer theoretischen Überlegung (siehe Gl. 2.25 und 2.26) berechnet werden:

$$k_{\mathrm{r}} = ACF\,k_{ax}\ . \tag{2.25}$$

Der ACF (**A**nisotropic **C**onductivity **F**actor) gibt hierbei das Verhältnis aus radialer zu axialer Wärmeleitfähigkeit wieder. Bestimmt wird dieser Faktor über die Einzelwiderstände der Wärmeleitung, d. h. aus der Berechnung des Wärmedurchgangswiderstandes. Eine Herleitung des $ACFs$ für quadratische Kanäle wurde von Groppi et al. [51] durchgeführt, die folgende Bestimmungsgleichung in Abhängigkeit vom Lückengrad aufgestellt haben:

$$ACF = 1 - \frac{\epsilon_{\mathrm{cat}}}{1 - \sqrt{\epsilon_{\mathrm{cat}}} + \epsilon_{\mathrm{cat}}}\ . \tag{2.26}$$

Schale (Canning) und Wärmeverlust an die Umgebung

Aufgrund der geringen Stärke der Schale von monolithischen Katalysatoren und der Tatsache, dass Stahl eine hohe Wärmeleitfähigkeit besitzt, wird die Energiebilanz für die Schale 1-dimensional durchgeführt:

$$\rho_{\mathrm{sh}}\, c_{\mathrm{p,sh}}\, \frac{\partial T_{\mathrm{sh}}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(k_{\mathrm{sh}} \frac{\partial T_{\mathrm{sh}}}{\partial z}\right) + \frac{\dot{q}_{\mathrm{m,sh}} - \dot{q}_{\mathrm{sh,amb}}}{\delta_{\mathrm{sh}}} \ . \tag{2.27}$$

Den Wärmestrom vom Monolithen an die Schale $\dot{q}_{\mathrm{m,sh}}$ erhält man anhand einer stark vereinfachten Bilanz für die Isolationsmatte. Die Speicherung von Energie wird aufgrund der geringen thermischen Masse der Isolierung vernachlässigt. Zudem wird eine Änderung der radialen Wärmestromdichte mit steigendem Radius nicht betrachtet ($\delta_{\mathrm{iso}} \ll d_{\mathrm{m}}$ bzw. d_{sh}). Für den radialen Wärmestrom zur Schale ergibt sich somit folgender Term:

$$\dot{q}_{\mathrm{m,sh}} = \frac{k_{\mathrm{iso}}}{\delta_{\mathrm{iso}}}\ (T_{\mathrm{m}} - T_{\mathrm{sh}}) \ . \tag{2.28}$$

Der Wärmeverlust an die Umgebung $\dot{q}_{\mathrm{sh,amb}}$ setzt sich aus einem konvektiven Wärmeübergang und einem Strahlungsanteil zusammen [47]:

$$\dot{q}_{\mathrm{sh,amb}} = h_{\mathrm{HT,conv,amb}}\ (T_{\mathrm{sh}} - T_{\mathrm{amb}}) + \sigma\, \epsilon^{*}_{\mathrm{sh}}\ \left(T^4_{\mathrm{sh}} - T^4_{\mathrm{amb}}\right) \ . \tag{2.29}$$

Die äußere Wärmeübergangszahl wird mittels empirischer Gleichungen berechnet. Unterschieden werden kann zwischen einer Längs- und einer Queranströmung des Katalysators. Dementsprechend wird für die charakteristische Länge entweder die Länge (Längsanströmung) oder der Umfang des Katalysators (Queranströmung) verwendet.

Für die Bestimmung des äußeren Wärmeübergangs werden folgende empirische Gleichungen verwendet [47]:

$$\overline{Nu}_{\mathrm{pf}} = \sqrt{\left(\overline{Nu}_{\mathrm{lam}}\right)^2 + \left(\overline{Nu}_{\mathrm{turb}}\right)^2} \tag{2.30}$$

für die Längsanströmung und

$$\overline{Nu}_{\mathrm{cf}} = 0,3 + \sqrt{\left(\overline{Nu}_{\mathrm{lam}}\right)^2 + \left(\overline{Nu}_{\mathrm{turb}}\right)^2} \tag{2.31}$$

für die Queranströmung. Beide Gleichungen gelten in einem Bereich von $10 < Re < 10^7$ und $0{,}6 < Pr < 1000$. Die laminare und turbulente Nußelt-Zahl werden mit Gln. 2.32 und 2.33 berechnet:

$$\overline{Nu}_{\mathrm{lam}} = 0,664\, Re^{1/2}\, Pr^{1/3} \ , \tag{2.32}$$

$$\overline{Nu}_{\mathrm{turb}} = \frac{0,037\, Re^{0,8}\, Pr}{1 + 2,443\, Re^{-0,1}\, (Pr^{2/3} - 1)} \ , \tag{2.33}$$

mit $Re = \frac{w\,L_0}{\nu}$ und $Pr = \frac{\nu}{\alpha}$.

Eine detaillierte Erläuterung sämtlicher innerer und äußerer Wärmeübergangszahlen (Einfachrohre, luftspaltisolierte Rohre, monolithische Katalysatoren) ist in früherer Arbeit [41] zu finden, in der die hier verwendeten Modelle thermodynamisch validiert wurden.

2.2.5 Strömungsprofil

In diesem Abschnitt wird kurz die iterative Berechnung des Strömungsprofils für den Fall der 2D-Simulation erläutert. Motiviert ist diese Berechnung durch die Tatsache, dass sich im Monolithen ein radiales Temperaturprofil ausbildet, welches wiederum zu unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten in den einzelnen Kanälen führt. Hervorgerufen wird das radiale Temperaturprofil durch einen Wärmeübergang vom Gas zum Konverter, chemische Reaktionen und Wärmeverlust nach außen. Mit der Annahme, dass der Druck vor und nach dem Konverter über dem Querschnitt homogen ist, ergibt sich entlang aller Stromfäden der repräsentativen Kanäle (radiale Stützstellen) der gleiche Druckverlust. Die Berücksichtigung dieser Annahme in Verbindung mit einem radialen Temperaturprofil im Monolithen muss zwangsläufig zu einer Korrektur des Strömungsprofils am Eintritt des Katalysators führen.

Eine detaillierte Beschreibung des Modells findet man in der Veröffentlichung von Kolaczkowski und Worth [52], auf der das implementierte Modell basiert, und in der Arbeit von Koltsakis und Tsinoglou [53], die als Unterschied zu Kolaczkowski und Worth [52] die Reibungsbeiwerte der Kontraktion und Expansion jedes Stromfadens (radiale Stützstelle) berücksichtigen und durch CFD-Simulationen anpassen. Vergleicht man die beiden Modelle, kann verkürzend festgehalten werden, dass das hier verwendete Modell von Kolaczkowski und Worth [52] vereinfachend von der Bernoulli-Gleichung – reibungsfreie Strömung – für den Strömungsein- und austritt (Kontraktion und Expansion) ausgeht. Somit entfällt ein zusätzlicher Parameter, der noch angepasst werden müsste [53]. Der Druckverlust im Inneren der Kanäle wird bei beiden Verfahren auf die gleiche Art und Weise bestimmt.

Abschließend ist festzuhalten, dass die Berechnung des Strömungsprofils für beide Konvertertypen – monolithische Katalysatoren und Dieselpartikelfilter – verwendet wird.

2.2.6 Reaktionsgeschwindigkeit

Zum Lösen der Komponentenbilanz wird der Umsatz der betrachteten Komponente benötigt (siehe Gl. 2.15), der über die Summe der Reaktionsgeschwindigkeiten

dieser bestimmt wird. Die allgemeine Reaktionsgeschwindigkeit einer heterogenen Reaktion k wird mit einem Produktansatz aus einer konzentrations- und temperaturabhängigen Funktion beschrieben:

$$\dot{r}_k = k_k \prod_l \theta_l^{n_l} \ , \tag{2.34}$$

mit k_k als dem Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizienten, n_l als der Reaktionsordnung und θ_l als dem Bedeckungsgrad einer an der Oberfläche adsorbierten Komponente. Der Laufindex l bezeichnet die Edukte der jeweiligen Reaktion k, die zur Beschreibung der Reaktionsgeschwindigkeit benötigt werden. Die Reaktionsgeschwindigkeit einer Komponente wird mit Hilfe des stöchiometrischen Koeffizienten wie folgt bestimmt:

$$\dot{r}_{j,k} = \nu_{j,k}\, \dot{r}_k \ , \tag{2.35}$$

mit j der Komponente, deren Umsatz bestimmt werden soll. Die in Gl. 2.34 verwendete temperaturabhängige Funktion (Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizient k_k) wird mit dem Arrhenius-Ansatz bestimmt:

$$k_k = k_{0,k}\, \exp\left(-\frac{E_{\mathrm{A},k}}{R\,T}\right) \ . \tag{2.36}$$

Eine Bedatung der verwendeten Reaktionsgleichungen mit den nötigen Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien erfolgt für die Aktivierungsenergien anhand von Literaturdaten [54, 55] und für die Frequenzfaktoren über eine Anpassung an Messdaten. Diese Anpassung der Frequenzfaktoren an Messdaten ist aufgrund der geringen Modelltiefe, zu nennen sind die nicht modellierte Porendiffusion und die nicht explizit modellierte Ad- und Desorption, die mit Hilfe eines Langmuir-Hinshelwood-Reaktionsmechanismus berücksichtigt wird, notwendig. Eine derartige Vereinigung verschiedener Phänomene zu einem anzupassenden Faktor wird „lumped-parameter"-Modellierung genannt.

2.2.7 Reaktionswärme

Um die Energiebilanz des Festkörpers zu lösen, muss die auf das gesamte Volumen des Katalysators bezogene Reaktionswärme $\dot{q}_{\mathrm{R}}^{*}$ berechnet werden:

$$\dot{q}_{\mathrm{R}}^{*} = (1 - \epsilon_{\mathrm{cat}})\ \dot{q}_{\mathrm{R}} \ . \tag{2.37}$$

Die Reaktionswärme $\dot{q}_{\mathrm{R}}$ – die Exothermie aller Reaktionen – wird aus der Summe der Produkte aus Reaktionsenthalpie und Reaktionsgeschwindigkeit aller Reaktionen multipliziert mit der spezifischen Oberfläche $a_{\mathrm{m}} = A_{\mathrm{sf}}/V_{\mathrm{m}}$ gewonnen:

$$\dot{q}_{\mathrm{R}} = \sum_k a_{\mathrm{m}}\, \dot{r}_k\, \Delta\tilde{h}_k^{\mathrm{R}} \quad \overset{\text{Gl.2.37}}{\Longrightarrow} \quad \dot{q}_{\mathrm{R}}^{*} = \sum_k a_{\mathrm{cat}}\, \dot{r}_k\, \Delta\tilde{h}_k^{\mathrm{R}} \ . \tag{2.38}$$

2.2.8 Randbedingungen

Zum Lösen der aufgeführten Bilanzen werden folgende Anfangs- und Randbedingungen verwendet. Für die Abgastemperatur, -massenstrom und -konzentrationen werden Eintrittsgrößen in Abhängigkeit von Zeit und Radius vorgegeben:

$$T_{\mathrm{g}}(t, r, z = 0) = T_{\mathrm{g,in}}(t, r) \ , \tag{2.39}$$

$$\dot{m}_{\mathrm{g}}(t, r, z = 0) = \dot{m}_{\mathrm{g,in}}(t, r) \ , \tag{2.40}$$

$$\xi_{\mathrm{g}}(t, r, z = 0) = \xi_{\mathrm{g,in}}(t, r) \tag{2.41}$$

bzw. im Teilchenbezugssystem

$$\tilde{x}_{\mathrm{g}}(t, r, z = 0) = \tilde{x}_{\mathrm{g,in}}(t, r) \, . \tag{2.42}$$

Für die Temperaturen der einzelnen Elemente des Katalysators (Monolith, Schale) können Starttemperaturen vorgegeben werden. Werden diese nicht gesetzt, so wird die Umgebungstemperatur als Startwert für die Simulation verwendet:

$$T_{\mathrm{sh}}(t = 0, z) = T_{\mathrm{sh},0}(z) \quad \vee \quad T_{\mathrm{sh}}(t = 0, z) = T_{\mathrm{amb}} \ , \tag{2.43}$$

$$T_{\mathrm{m}}(t = 0, r, z) = T_{\mathrm{m},0}(r, z) \quad \vee \quad T_{\mathrm{m}}(t = 0, r, z) = T_{\mathrm{amb}} \ . \tag{2.44}$$

Der Sauerstoffspeicher, dargestellt in Form einer Speicherfunktion ψ, die Werte zwischen 0 und 1 annehmen kann, gilt zum Zeitpunkt $t = 0$ als voll beladen:

$$\psi(t = 0) = 1 \ . \tag{2.45}$$

Ein Wärmeübergang an den Stirnflächen des Katalysators wird vernachlässigt, so dass dort folgendes gilt:

$$\left.\frac{\partial T_j}{\partial z}\right|_{z=0} = 0 \quad \wedge \quad \left.\frac{\partial T_j}{\partial z}\right|_{z=L} = 0 \ , \tag{2.46}$$

mit $j = \mathrm{m}$ für den Monolithen bzw. $j = \mathrm{sh}$ für die Schale (Canning).

2.3 Drei-Wege-Katalysator

2.3.1 Reaktionen

Der Drei-Wege-Katalysator beinhaltet allgemein folgende zwei Oxidations- und eine Reduktionsreaktion:

1. Oxidation von Kohlenwasserstoffen,
2. Oxidation von Kohlenstoffmonoxid und Wasserstoff,
3. Reduktion von Stickstoffmonoxid.

Als Repräsentanten für langsam bzw. schnell reagierende Kohlenwasserstoffe werden Methan (CH_4) und Propen (C_3H_6) verwendet. Bei allen Reaktionsgleichungen wird ein Langmuir-Hinshelwood-Reaktionsmechanismus verwendet, bei dem alle Reaktionspartner an der Oberfläche adsorbieren und im adsorbierten Zustand miteinander reagieren. Die Reaktionsgleichungen der Oxidation beruhen dabei auf der Arbeit von Voltz et al. [32]. Bei der Berücksichtigung der Reduktionsreaktion kann im Programm zwischen zwei Reaktionsmechanismen, einer einfachen Reaktionskinetik von Konstantas und Stamatelos [56] (siehe auch Pontikakis et al. [57]) bzw. der Reaktionskinetik von Subramaniam und Varma [33], gewählt werden. Die im weiteren Verlauf gezeigten Ergebnisse sind aufgrund des geringeren Rechenaufwandes mit der vereinfachten Reaktionskinetik (Reaktion 5) durchgeführt worden.

Tab. 2.1: *Reaktionen des Drei-Wege-Katalysators ohne Sauerstoffspeicher*

Nr.	Reaktionspfad	Reaktionsgleichung
Oxidation		
1	$CH_4 + 2\ O_2 \rightharpoonup CO_2 + 2\ H_2O$	$\dot{r}_1 = \frac{k_1\,\tilde{x}_{CH_4}\,\tilde{x}_{O_2}}{G1}$
2	$C_3H_6 + \frac{9}{2}\ O_2 \rightharpoonup 3\ CO_2 + 3\ H_2O$	$\dot{r}_2 = \frac{k_2\,\tilde{x}_{C_3H_6}\,\tilde{x}_{O_2}}{G1}$
3	$CO + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup CO_2$	$\dot{r}_3 = \frac{k_3\,\tilde{x}_{CO}\,\tilde{x}_{O_2}}{G1}$
4	$H_2 + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup H_2O$	$\dot{r}_4 = \frac{k_4\,\tilde{x}_{H_2}\,\tilde{x}_{O_2}}{G1}$
Reduktion von Stickstoffmonoxid		
5	$CO + NO \rightharpoonup CO_2 + \frac{1}{2}N_2$	$\dot{r}_5 = k_5\,\tilde{x}_{CO}\,\tilde{x}_{NO}$
5a	$CO + NO \rightharpoonup CO_2 + \frac{1}{2}N_2$	$\dot{r}_{5a} = \frac{k_{5a}\,\tilde{x}_{CO}^{1,4}\,\tilde{x}_{NO}^{0,13}\,\tilde{x}_{O_2}^{0,3}}{G2}$

Der Term $G1$ der Oxidationsreaktionen nach Voltz et al. [32] bzw. $G2$ der Reduktionsreaktion nach Subramaniam und Varma [33] steht hierbei für die gegenseitige Behinderung der einzelnen Komponenten untereinander bei der Ad- und Desorption (Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik). Die Terme setzen sich wie folgt zusammen:

$$G1 = T\ \left(1 + K_1\,\tilde{x}_{CO} + K_2\,\tilde{x}_{C_3H_6}\right)\ \left(1 + K_3\ \left(\tilde{x}_{CO}\,\tilde{x}_{C_3H_6}\right)^2\right)\ \left(1 + K_4\,\tilde{x}_{NO}^{0,7}\right) \tag{2.47}$$

und

$$G2 = T^{-0,17}\ \left(T + K_{5a}\,\tilde{x}_{CO}\right)^2\ , \tag{2.48}$$

mit K_k den Parametern der Behinderungsterme, die in Anhang A.1 näher erläutert werden.

Außer den bisher dargestellten Reaktionen werden auch Reaktionen mit im Washcoat eingebrachtem Sauerstoffspeicher, meist Ceriumoxid oder eine Mischung aus Cerium- und Zirkoniumoxid, berücksichtigt (siehe Tab. 2.2) [17, 18, 55].

Tab. 2.2: *Sauerstoffspeicherreaktionen des Drei-Wege-Katalysators*

Nr.	Reaktionspfad	Reaktionsgleichung
Einlagern des Sauerstoffs		
6	$Ce_2O_3 + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup 2\ CeO_2$	$\dot{r}_6 = k_6\, \tilde{x}_{Ce_2O_3}\, \tilde{x}_{O_2}$
7	$Ce_2O_3 + NO \rightharpoonup 2\ CeO_2 + \frac{1}{2}\ N_2$	$\dot{r}_7 = k_7\, \tilde{x}_{Ce_2O_3}\, \tilde{x}_{NO}$
Abgabe des Sauerstoffs		
8	$8\ CeO_2 + CH_4 \rightharpoonup 4\ Ce_2O_3 + CO_2 + 2\ H_2O$	$\dot{r}_8 = k_8\, \tilde{x}_{CeO_2}\, \tilde{x}_{CH_4}$
9	$18\ CeO_2 + C_3H_6 \rightharpoonup 9\ Ce_2O_3 + 3\ CO_2 + 3\ H_2O$	$\dot{r}_9 = k_9\, \tilde{x}_{CeO_2}\, \tilde{x}_{C_3H_6}$
10	$2\ CeO_2 + CO \rightharpoonup Ce_2O_3 + CO_2$	$\dot{r}_{10} = k_{10}\, \tilde{x}_{CeO_2}\, \tilde{x}_{CO}$
11	$2\ CeO_2 + H_2 \rightharpoonup Ce_2O_3 + H_2O$	$\dot{r}_{11} = k_{11}\, \tilde{x}_{CeO_2}\, \tilde{x}_{H_2}$

Durch Beifügen des Sauerstoffspeichers lässt sich der Wirkungsgrad eines Drei-Wege-Katalysators steigern, da die Schwankungen des Verbrennungsluftverhältnisses λ geglättet werden, und so Durchbrüche von Kohlenstoffmonoxid und Kohlenwasserstoffen im fetten ($\lambda < 1$) und von Stickstoffmonoxid im mageren Bereich ($\lambda > 1$) vermieden werden. Das Ceriumoxid wechselt dabei zwischen einem 3- und 4-wertigem Zustand. Das 4-wertige Ceriumoxid ist ein Sauerstoffdonator und geht nach der Sauerstoffabgabe in den 3-wertigen Zustand über. Von diesem kann es dann durch eine Sauerstoffaufnahme erneut in den 4-wertigen Zustand gebracht werden. Außer der Funktion des Sauerstoffspeichers dient Ceriumoxid bzw. Cerium-/Zirkoniumoxid dazu den Washcoat zu stabilisieren, ein Sintern des Aluminiumoxids zu verhindern, für eine gute Dispersion der Edelmetalle zu sorgen und die „Water-Gas-Shift"-Reaktion zu fördern [12, 13].

2.3.2 Sauerstoffspeicher

In Abschn. 2.3.1 sind sämtliche Reaktionen dargestellt, an denen der Sauerstoffspeicher beteiligt ist. Bei der Modellierung des Sauerstoffspeichers wird von Ceriumoxid ausgegangen. Es soll lediglich der Wechsel zwischen Be- und Entladen des Sauerstoffspeichers betrachtet werden.

Es wird eine Speicherfunktion ψ definiert, mit welcher der Beladungszustand des Sauerstoffspeichers beschrieben wird [55]:

$$\psi = \frac{Ce_+}{\sum Ce} = \frac{Ce_+}{Ce_+ + Ce_-} = \frac{c_{CeO_2}}{c_{CeO_2} + 2\, c_{Ce_2O_3}}\ , \tag{2.49}$$

mit Ce_+ als einem mit Sauerstoff belegten Platz und Ce_- als einem freien Platz. Die Summe aller freien und belegten Sauerstoffspeicherplätze ist die maximale Kapazität $\psi_{cap} = c_{CeO_2} + 2\, c_{Ce_2O_3}$.

Die Anteile an beladenem und unbeladenem Sauerstoffspeicher können mit Gl. 2.49 dann wie folgt dargestellt werden [17]:

$$c_{\mathrm{CeO_2}} = \psi\,\psi_{\mathrm{cap}}\ , \tag{2.50}$$

$$c_{\mathrm{Ce_2O_3}} = \frac{1}{2}\,(1-\psi)\,\psi_{\mathrm{cap}}\ . \tag{2.51}$$

Um den Beladungszustand des Sauerstoffspeichers zu ermitteln, wird eine Bilanz für die Speicherfunktion ψ durchgeführt, bei der sämtliche Sauerstoffspeicherreaktionen berücksichtigt werden müssen:

$$\frac{\mathrm{d}\psi}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{\psi_{\mathrm{cap}}}\,(\text{ Produktion von } \mathrm{CeO_2} - |\text{Verbrauch von } \mathrm{CeO_2}|)\ . \tag{2.52}$$

Die Produktion von CeO_2 wird mit der Summe der Reaktionen der Einlagerung von Sauerstoff $\sum_{k=6}^{7} \dot{r}_{\mathrm{Ce_2O_3},k}$ beschrieben. Mit Gl. 2.50 können die Reaktionen aus Tab. 2.2 in Abhängigkeit von der Speicherfunktion ψ und der maximalen Kapazität des Sauerstoffspeichers ψ_{cap} dargestellt werden:

$$\sum_{k=6}^{7} \nu_{\mathrm{CeO_2},k}\,k_k\,\tilde{x}_k\,\frac{1}{2}\,(1-\psi)\,\psi_{\mathrm{cap}}\ , \tag{2.53}$$

mit dem molaren Anteil $\tilde{x}_k = \mathrm{O_2}$ bzw. NO für die jeweilige Reaktion k.

Der Verbrauch von CeO_2 wird mit der Summe der Reaktionen der Abgabe von Sauerstoff $\sum_{k=8}^{11} \dot{r}_{\mathrm{CeO_2},k}$ bestimmt. Eine Darstellung als Funktion der Speicherfunktion ψ und der maximalen Kapazität des Sauerstoffspeichers ψ_{cap} führt zu folgendem Ausdruck:

$$\sum_{k=8}^{11} \nu_{\mathrm{CeO_2},k}\,k_k\,\tilde{x}_k\,\psi\,\psi_{\mathrm{cap}}\ , \tag{2.54}$$

mit dem molaren Anteil $\tilde{x}_k = \mathrm{CH_4}$, $\mathrm{C_3H_6}$, CO und $\mathrm{H_2}$ für die jeweilige Reaktion k.

Unter Berücksichtigung von Gl. 2.53 und 2.54 ergibt sich für den Beladungszustand des Sauerstoffspeichers letztlich folgende Bilanz:

$$\frac{\mathrm{d}\psi}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{\psi_{\mathrm{cap}}}\left(\sum_{k=6}^{7} \nu_{\mathrm{CeO_2},k}\,k_k\,\tilde{x}_k\,\frac{1}{2}\,(1-\psi)\,\psi_{\mathrm{cap}} + \sum_{k=8}^{11} \nu_{\mathrm{CeO_2},k}\,k_k\,\tilde{x}_k\,\psi\,\psi_{\mathrm{cap}}\right)\ . \tag{2.55}$$

Die maximale Sauerstoffspeicherkapazität ψ_{cap} kann mit Gl. 2.56 aus dem vom Hersteller der Beschichtung vorgegebenen bzw. anhand von Messungen bestimmten Sauerstoffspeicher des Katalysators, der als Masse Sauerstoff in Gramm je Liter Katalysatorvolumen (*OSC* – **O**xygen **S**torage **C**apacity – in g/l) angegeben ist, berechnet werden:

$$\psi_{\mathrm{cap}} = \frac{4}{\epsilon_{\mathrm{cat}}}\,\frac{1}{\tilde{M}_{\mathrm{O_2}}}\,OSC\,. \tag{2.56}$$

Angaben zu Reaktionsenthalpien der einzelnen Sauerstoffspeicherreaktionen konnten im Rahmen einer Literaturrecherche nicht ermittelt werden. Allerdings lassen sich diese durch eine Umformung der jeweiligen Reaktionsgleichung, so dass die gesuchten Reaktionsenthalpien durch Reaktionsenthalpien bekannter Reaktionen dargestellt werden, berechnen. Die Reaktionsenthalpie von Reaktion 6 wird dabei für die Herleitung als bekannt angenommen. Da auch dieser Wert nicht ermittelt werden konnte, wird er vereinfachend zu null gesetzt ($\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} = 0$).

Am Beispiel von Reaktion 7 wird die Reaktionsenthalpie hergeleitet. Als erstes wird die Reaktionsgleichung mit CO_2 erweitert und dann wie folgt umgeformt:

$$\begin{aligned}
\mathrm{Ce_2O_3 + NO + CO_2} &\rightharpoonup (\mathrm{NO + Ce_2O_3}) + \left(\mathrm{CO} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2} - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}}\right) \\
&\rightharpoonup (\mathrm{CO + NO}) + \left(\mathrm{Ce_2O_3} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2}\right) - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup (\mathrm{CO + NO}) + \left(2\,\mathrm{CeO_2} + \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup \left(\mathrm{CO_2} + \frac{1}{2}\,\mathrm{N_2} + \Delta\tilde{h}_5^{\mathrm{R}}\right) + \left(2\,\mathrm{CeO_2} + \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup 2\,\mathrm{CeO_2} + \frac{1}{2}\,\mathrm{N_2} + \mathrm{CO_2} + \Delta\tilde{h}_5^{\mathrm{R}} + \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}}\ . \qquad (2.57)
\end{aligned}$$

Durch Kürzen von CO_2 erhält man die gesuchte Reaktionsgleichung der Reaktion 7 (Einlagerung von Sauerstoff durch NO) und somit die Reaktionsenthalpie. Die Herleitungen für die Reaktionen 8 bis 11 befinden sich in Anhang A.7. Die Reaktionsenthalpien der Reaktionen 7 bis 11 lauten wie folgt:

$$\Delta\tilde{h}_7^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_5^{\mathrm{R}} + \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.58)$$

$$\Delta\tilde{h}_8^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_1^{\mathrm{R}} - 4\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.59)$$

$$\Delta\tilde{h}_9^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_2^{\mathrm{R}} - 9\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.60)$$

$$\Delta\tilde{h}_{10}^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.61)$$

$$\Delta\tilde{h}_{11}^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_4^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.62)$$

und können mit der vereinfachenden Annahme $\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} = 0$ weiter zu folgenden Gleichungen reduziert werden:

$$\Delta\tilde{h}_7^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_5^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.63)$$

$$\Delta\tilde{h}_8^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_1^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.64)$$

$$\Delta\tilde{h}_9^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_2^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.65)$$

$$\Delta\tilde{h}_{10}^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}}\ , \qquad (2.66)$$

$$\Delta\tilde{h}_{11}^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_4^{\mathrm{R}}\ . \qquad (2.67)$$

2.4 Dieseloxidationskatalysator

Im Gegensatz zum Drei-Wege-Katalysator arbeitet ein Dieseloxidationskatalysator nach dem Zwei-Wege-Prinzip, das eine Oxidation der limitierten Komponenten THC und CO beinhaltet. Darüberhinaus werden auch flüchtige Bestandteile der Partikel (SOF – **S**oluble **O**rganic **F**raction) in der Gasphase umgesetzt. Bei „scharfen“ Katalysatoren [58] – sie besitzen einen hohen Platingehalt – kann außerdem eine erhöhte, gewünschte Oxidation von NO zu NO_2 stattfinden, was nur in Verbindung mit einem Partikelfilter erwünscht ist (siehe CRT®-System Abschn. 3.1.1). Es ist jedoch festzuhalten, dass sich bei der reinen Verwendung eines Dieseloxidationskatalysators die Gesamtmenge an NO_x nicht ändert, da aufgrund des dauerhaft mageren Verbrennungsverhältnisses keine Reduktion von Stickstoffmonoxid möglich ist.

2.4.1 Reaktionen

Als Repräsentanten für schnelle bzw. langsam reagierende Kohlenwasserstoffe werden hier ebenfalls Propen und Methan verwendet, und auch die Beschreibung der Reaktionen erfolgt über den Langmuir-Hinshelwood-Reaktionsmechanismus nach Voltz et al. [32]. Tabelle 2.3 zeigt die im Dieseloxidationskatalysator im wesentlichen möglichen Reaktionen.

Tab. 2.3: *Reaktionen des Dieseloxidationskatalysators*

Nr.	Reaktionspfad	Reaktionsgleichung
Oxidation		
1	$CH_4 + 2\ O_2 \rightharpoonup CO_2 + 2\ H_2O$	$\dot{r}_1 = \frac{k_1\, \tilde{x}_{CH_4}\, \tilde{x}_{O_2}}{G_1}$
2	$C_3H_6 + \frac{9}{2}\ O_2 \rightharpoonup 3\ CO_2 + 3\ H_2O$	$\dot{r}_2 = \frac{k_2\, \tilde{x}_{C_3H_6}\, \tilde{x}_{O_2}}{G_1}$
3	$CO + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup CO_2$	$\dot{r}_3 = \frac{k_3\, \tilde{x}_{CO}\, \tilde{x}_{O_2}}{G_1}$
4	$H_2 + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup H_2O$	$\dot{r}_4 = \frac{k_4\, \tilde{x}_{H_2}\, \tilde{x}_{O_2}}{G_1}$
Oxidation von Stickstoffmonoxid		
5	$NO + \frac{1}{2}\ O_2 \rightharpoonup NO_2$	$\dot{r}_5 = \frac{k_5\, \tilde{x}_{NO}\, \tilde{x}_{O_2}}{G_1}$

2.4.2 Bilanzierung der flüchtigen Bestandteile der Partikel (SOF)

Im Unterschied zu der allgemeinen Herleitung der Komponentenbilanz für monolithische Katalysatoren (siehe Abschn. 2.2.2) wird für das Modell des Dieseloxidationskatalysators außer den heterogenen Reaktionen auch eine Gasphasenreaktion (homogen) berücksichtigt. Diese Gasphasenreaktion beschreibt die Oxidation der auf den Partikeln adsorbierten flüchtigen Bestandteile (SOF), was eine Reduktion der Gesamtmasse an Partikeln zur Folge hat.

Zur Beschreibung des Umsatzes an SOF wird ein stark vereinfachtes Modell verwendet. Die SOF werden hierbei nicht über langkettige Kohlenwasserstoffe dargestellt, sondern über einen Massen- bzw. Molanteil an SOF. Dieser reagiert dann mit einer anzupassenden Reaktionsgeschwindigkeit in der Gasphase ab:

$$w_z \frac{\partial \tilde{x}_{\mathrm{SOF}}}{\partial z} = -k_{\mathrm{SOF}}\, \tilde{x}_{\mathrm{SOF}} \ . \tag{2.68}$$

Ein Anpassen des Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizienten k_{SOF} war bisher nicht möglich, da bei den Versuchen zur Validierung des Dieseloxidationskatalysators eine Messung von SOF nicht möglich war, und somit der Umsatz an SOF nicht bestimmt werden konnte.

Kapitel 3

Dieselpartikelfilter

In dieser Arbeit wird der monolithische Zellenfilter für den unbeschichteten Fall modelliert. Weitere Arten werden jedoch im Folgenden kurz dargestellt.

3.1 Einleitung

Filtermedien für Dieselpartikelfilter müssen oberflächenreiche Strukturen besitzen und aus hochwarmfesten Materialien bestehen, da die Anforderungen an DPF-Systeme – thermische Beständigkeit bei raschen Temperaturwechseln und Temperaturspitzen bis ca. 1400°C, hohe Speicherfähigkeit für Ruß und Asche, geringe thermische Masse (gutes Anspringverhalten), Abscheidegrade > 90 %, hohe Festigkeit (Fahrzeug-Vibrationen, Reinigung), Resistenz gegenüber Additiven und Schmieröl-Asche – hoch sind. In Frage kommen folgende Filterarten [1]:

- monolithisch-poröse keramische Strukturen in Zellenform,
- monolithisch-poröse keramische Strukturen als Schäume,
- hochlegierte poröse Metall-Sinterstrukturen,
- hochlegierte poröse Metallschäume,
- Faserstrukturen als Vliese, Garnwickel oder in textiler Bindung (keramische oder metallische Fasern).

Die Automobilindustrie hat ihren Fokus auf die monolithischen Zellenfilter gelegt, die entweder aus Cordierit oder Siliziumkarbid (SiC) bestehen. Der Unterschied liegt in der Art der Fertigung und in ihrem Aufbau. Cordierit-Filter werden in einem Stück gefertigt, wohingegen SiC-Filter aus einzelnen Segmenten bestehen, die dann zu einem Filter verklebt werden.

Das Abscheiden der Partikel im monolithischen Zellenfilter erfolgt bei leerem Filter zuerst durch eine Tiefenfiltration innerhalb der Filterwände. Hierbei dienen die

Filterwände nicht als Sieb, sondern Partikel werden durch das Wirken von Kräften abgeschieden. Welche Kraft auf das Partikel wirkt, hängt von der Größe des Partikels ab, was die folgende Aufzählung verdeutlicht [1, 59]:

- Größere Partikel – Impaktion (Trägheitswirkung),
- Kleinere Partikel – Interzeption (Sperrwirkung),
- Nanopartikel – Diffusion.

Mit steigender Beladung der Filterwände bildet sich auch an der Oberfläche der Wände ein Filterkuchen aus Ruß; die reine Tiefenfiltration geht in die Kuchenfiltration über. Bei der Kuchenfiltration werden Partikel größer als der Porendurchmesser des Filterkuchens durch Siebeffekte abgeschieden, kleinere Partikel auch weiterhin im Filterkuchen bzw. der Filterwand durch Tiefenfiltration [55, 60].

3.1.1 Regenerationsverfahren

Bei den Regenerationsarten wird zwischen zwei Arten unterschieden: der passiven Regeneration, bei der nicht regelnd eingegriffen wird, und der aktiven Regeneration, bei der über das Motorsteuergerät aktiv eine Regeneration erzwungen wird. Regeneriert wird der Ruß, der hier als reiner Kohlenstoff modelliert wird, mit O_2 oder NO_2 als Oxidationsmittel. Die Regeneration mit O_2 beginnt ab einer Temperatur von ca. 500-600°C [38, 50], so dass diese Regenerationsart aufgrund geringer Abgastemperaturen – im städtischen Fahrbetrieb ca. 200°C [61] – aktiv betrieben werden muss. Der Rußabbrand mit NO_2 hingegen beginnt bereits ab einer Temperatur von ca. 250°C [50] und lässt somit in einigen Bereichen auch eine passive Regeneration zu.

Die Ausführung eines Partikelfilters hängt von der Art des Regenerationsverfahrens ab. Unter den verwendeten Systemen finden sich [1]:

- *Elektrische Beheizung* in Form von Gesamtbeheizung des Gasstroms oder durch Ohmsche Wärme bei elektrisch leitenden Werkstoffen (SiC).
- *Anhebung der Abgastemperatur* durch Späteinspritzung, Nacheinspritzung, Drosselung und Abgasrückführung. Bei der Nacheinspritzung beispielsweise werden unverbrannte THC katalytisch im DOC, der dem DPF vorgeschaltet ist, umgesetzt. Die entstehende Exothermie hebt die Temperatur des Abgases an.
- *Zuführung von Additiven* als Katalysator, die die Aktivierungsenergie des Rußabbrands auf ca. 300°C absinken. Verwendet werden meist Cerium, Eisen, Kupfer und Strontium. Das Additiv wird bereits während der Verbrennung in den Brennraum des Motors zugegeben, so dass sich der Katalysator im entstehenden Ruß anlagert.

- Durch die *katalytische Beschichtung* des Partikelfilters (beschichtete Partikelfilter, CSF – **C**atalysed **S**oot **F**ilter) wird ebenfalls eine Absenkung der Rußzündtemperatur erreicht. Ferner kann eine Beschichtung auf der Reingasseite (Austrittskanal) zur Nachoxidation von CO und THC benutzt werden. Als weiterer Effekt wird NO zu NO_2 aufoxidiert, was zu einem Rußabbrand bereits ab ca. 250°C [50] führt.

Als weitere Varianten werden das CRT®-System[1] (DOC und DPF), das CCRT®-System[2] (DOC und CSF), SCRT®-System[3] (DOC, DPF und SCR) und der DPNR-Katalysator[4] (DPF und NO_x-Speicherkatalysator) verwendet. Beim CRT®-System wird im vorgeschalteten DOC gezielt NO_2 erzeugt, das dann wiederum für einen kontinuierlichen Abbrand des Rußes im DPF sorgt. Das CCRT®-System basiert auf dem Effekt des CRT®-Systems. Zusätzlich wird im CSF das zu NO reduzierte NO_2 erneut aufoxidiert, so dass ein erhöhter Rußabbrand mit NO_2 stattfindet. SCRT®-System und DPNR-Katalysator dienen zusätzlich noch zur Reduktion der NO_x.

3.1.2 Dichte des Rußes

Die Dichte des Rußes spielt bei der Simulation von Partikelfiltern eine entscheidende Rolle. Aus ihr resultiert die Dicke des Rußkuchens, die wiederum sowohl bei der Berechnung des Druckverlusts als auch beim Rußabbrand eine Rolle spielt.

Für die Berechnungen in dieser Arbeit wird eine Dichte von 56 kg/m^3 angenommen. Dieser Wert beruht auf einer Literaturstudie in Verbindung mit experimentellen Untersuchungen an beladenen Partikelfiltern, die Law et al. [62] durchgeführt haben. Ihr Wert stimmt mit dem von Otto et al. [63] 24 Jahre zuvor ermittelten Wert überein. Otto et al. [63] verglichen Dichten von aus dem Filter herausgeschütteltem Ruß mit Werten, bei denen der Ruß mit Aceton aus dem Filter herausgewaschen wird. Für den Ersteren wurde der genannte Wert von 56 kg/m^3 ermittelt, während für den mit Aceton ausgewaschenen Ruß eine Dichte von 400 kg/m^3 ermittelt wurde. Als Ursache hierfür ist der Zusammenbruch der Struktur zu nennen [63].

Weitere in anderen Arbeiten verwendete gängige Werte reichen von 50 kg/m^3 [64], über 75 kg/m^3 [65] und 91 kg/m^3 [40] bis hin zu 140 kg/m^3 [66,67]. Mögliche Gründe für die starken Abweichungen sind die Verwendung unterschiedlicher Motoren oder Lastpunkte zum Beladen der Filter, von denen die Struktur des Rußes abhängt (siehe Abschn. 5.5). Ferner ist die Bestimmung der Rußdichte im Allgemeinen sehr kompliziert [65].

[1] Europäisches Patent CRT EP 0835684, Johnson Matthey Plc
[2] Johnson Matthey Plc
[3] Johnson Matthey Plc
[4] Toyota Motor Corporation

3.2 Bilanzgleichungen und Modelle

Die Bilanzgleichungen des Partikelfilters werden allgemein für den instationären Fall aufgestellt. Für die durchgeführten Rechnungs-/Messungsvergleiche wird allerdings eine quasistationäre Näherung – Ausnahme ist die Energiebilanz des Festkörpers – verwendet, die auch im Endergebnis der Bilanzierungen von Masse, Impuls und Energie dargestellt ist. Bei der Bilanzierung der Energie werden lediglich die Gasphase des Ein- und Austrittskanals und der Festkörper beschrieben. Bezüglich der Isolationsmatte bzw. Katalysatorschale wird auf den Abschn. 2.2.4 verwiesen, da diesbezüglich keine Unterschiede vorhanden sind.

3.2.1 Geometrische Umrechnungen

Zur Bestimmung der für den Druckverlust relevanten Dicke des Rußkuchens sind einige Nebenrechnungen notwendig, die im Folgenden durchgeführt werden.

Für das Gasvolumen einer Einheitszelle eines Eintrittkanals (siehe Abb. 3.2) können folgende Volumina bestimmt werden:

$$\text{leerer Filter} \quad V^0_{\mathrm{g,1,cell}} = A^0_{\mathrm{g,1,cell}}\, L_{\mathrm{DPF}} \ , \tag{3.1}$$

$$\text{beladener Filter} \quad V_{\mathrm{g,1,cell}} = A_{\mathrm{g,1,cell}}\, L_{\mathrm{DPF}} \ . \tag{3.2}$$

Das Rußvolumen einer Einheitszelle ergibt sich dann als Differenz der beiden eben beschriebenen Volumina:

$$V_{\mathrm{s}} = V^0_{\mathrm{g,1,cell}} - V_{\mathrm{g,1,cell}} \tag{3.3}$$

$$= \left(A^0_{\mathrm{g,1,cell}} - A_{\mathrm{g,1,cell}}\right)\, L_{\mathrm{DPF}} \tag{3.4}$$

$$= \left(\left(d^0_{\mathrm{h},1}\right)^2 - d^2_{\mathrm{h},1}\right)\, L_{\mathrm{DPF}} \tag{3.5}$$

$$= \left(\left(d^0_{\mathrm{h},1}\right)^2 - \left(d^0_{\mathrm{h},1} - 2\delta_{\mathrm{s}}\right)^2\right)\, L_{\mathrm{DPF}} \ . \tag{3.6}$$

Der Lückengrad ϵ bzw. OFA (**O**pen **F**rontal **A**rea) eines monolithischen Zellenfilters ergibt sich aus dem Verhältnis von Gas- und Gesamtvolumen. In dieser Arbeit wird zwischen den folgenden Lückengraden unterschieden:

$$\epsilon_j = \frac{V_{\mathrm{g},j}}{V_{\mathrm{DPF}}}, \tag{3.7}$$

$$\epsilon_{\mathrm{g},j} = \frac{d^2_{\mathrm{h},j}}{\left(d^0_{\mathrm{h},j} + \delta_{\mathrm{w}}\right)^2} \ , \tag{3.8}$$

mit $j = 1$ für den Eintritts- und $j = 2$ für den Austrittskanal.

Der Gesamtlückengrad des leeren Partikelfilters wird über die Summe der Lückengrade des Ein- und Austrittskanals im unbeladenen Zustand wie folgt bestimmt:

$$\epsilon_{\mathrm{DPF}} = \sum_j \epsilon_j^0 = \frac{V_{\mathrm{g}}^0}{V_{\mathrm{DPF}}} \quad \wedge \quad (1-\epsilon_{\mathrm{DPF}}) = \left(1 - \sum_j \epsilon_j^0\right) = \frac{V_{\mathrm{m}}}{V_{\mathrm{DPF}}} \ . \tag{3.9}$$

Mit der allgemeinen Definition der Zelldichte aus Gl. 2.1 kann die Zelldichte für die Einheitszelle wie folgt dargestellt werden:

$$CPSI = \frac{1}{\left(d_{\mathrm{h},j}^0 + \delta_{\mathrm{w}}\right)^2} \tag{3.10}$$

$$= \frac{1}{A_{j,\mathrm{cell}}} \ . \tag{3.11}$$

Bei den spezifischen Oberflächen sollte im Rahmen dieser Arbeit zwischen drei Definitionen unterschieden werden:

$$a_{\mathrm{g},j} = \frac{A_{\mathrm{sf},j}}{V_{\mathrm{g},j}} \ , \tag{3.12}$$

$$a_j = \frac{A_{\mathrm{sf},j}}{V_{\mathrm{DPF}}} \tag{3.13}$$

und für den leeren Filter

$$a_{\mathrm{DPF}} = \sum_j a_j^0 = \sum_j \frac{A_{\mathrm{sf},j}^0}{V_{\mathrm{DPF}}} = \frac{A_{\mathrm{sf}}^0}{V_{\mathrm{DPF}}} \ . \tag{3.14}$$

Eine Umrechnung in die jeweilige spezifische Oberfläche ist über den dazugehörigen Lückengrad möglich:

$$a_j = \epsilon_j \, a_{\mathrm{g},j} \ , \tag{3.15}$$

$$a_{\mathrm{DPF}} = \epsilon_{\mathrm{DPF}} \, a_{\mathrm{g}}^0 \ . \tag{3.16}$$

3.2.2 Dicke des Rußkuchens

Gleichung 3.8 und 3.10 in Gl. 3.6 eingesetzt ergibt folgenden Term für das Rußvolumen einer Einheitszelle:

$$V_{\mathrm{s}} = \left(\frac{\epsilon_{\mathrm{g},1}^0}{CPSI_1} - \left(\sqrt{\frac{\epsilon_{\mathrm{g},1}^0}{CPSI_1}} - 2\delta_{\mathrm{s}} \right)^2 \right) L_{\mathrm{DPF}} \ , \tag{3.17}$$

mit $\epsilon_{\mathrm{g},1}^0$ als der Lückengrad des Eintrittskanals im unbeladenen Zustand. Die in dieser Arbeit betrachtete Geometrie der Zellen ist der gängige und einfachste Fall von gleichen Ein- und Austrittskanälen [68]. Somit gilt für das Verhältnis aus Lückengrad und Zelldichte des leeren Filters folgender Zusammenhang:

$$\epsilon_{\mathrm{g},1}^0 = \epsilon_{\mathrm{g},2}^0 = \epsilon_{\mathrm{DPF}} \quad \wedge \quad CPSI_1 = CPSI_2 = CPSI \ , \tag{3.18}$$

$$\epsilon_j^0 = \frac{\epsilon_{\mathrm{DPF}}}{2} \quad \wedge \quad a_j^0 = \frac{a_{\mathrm{DPF}}}{2} \ , \tag{3.19}$$

wobei die Zelldichte *CPSI* die des gesamten Filters ist.

Die Masse an Ruß bzw. das Volumen in einer Einheitszelle wird über die Rußbeladung, die Dichte und das gesamte Volumen der Einheitszelle berechnet. Der Ruß lagert sich dabei nur im Eintrittskanal ab. Da die Rußbeladung auf das gesamte Filtervolumen – Ein- und Austrittskanäle – bezogen ist, muss zur Bestimmung des Rußvolumens die Rußbeladung mit 2 multipliziert werden:

$$V_{\mathrm{s}} = \frac{2\,SL\,V_{1,\mathrm{cell}}}{\rho_{\mathrm{s}}}\ . \tag{3.20}$$

Mit Gl. 3.11 und unter Berücksichtigung gleicher Geometrie der Ein- und Austrittskanäle kann Gl. 3.20 weiter vereinfacht werden:

$$V_{\mathrm{s}} = \frac{2\,SL}{\rho_{\mathrm{s}}}\frac{L_{\mathrm{DPF}}}{CPSI}\ . \tag{3.21}$$

Durch Gleichsetzen der Gln. 3.17 und 3.21 kann die Dicke des Rußkuchens als Funktion des Lückengrades, der Zelldichte, der Rußbeladung und der Rußdichte angegeben werden:

$$2\,\frac{SL}{\rho_{\mathrm{s}}}\frac{L_{\mathrm{DPF}}}{CPSI} = \left(\frac{\epsilon_{\mathrm{DPF}}}{CPSI} - \left(\sqrt{\frac{\epsilon_{\mathrm{DPF}}}{CPSI}} - 2\,\delta_{\mathrm{s}}\right)^2\right) L_{\mathrm{DPF}}\ . \tag{3.22}$$

Als Lösung ergibt sich dann folgender Ausdruck für die Dicke des Rußkuchens:

$$\Rightarrow \delta_{\mathrm{s}} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\epsilon_{\mathrm{DPF}}}{CPSI}}\left(1 - \sqrt{1 - \frac{2\,SL}{\epsilon_{\mathrm{DPF}}\,\rho_{\mathrm{s}}}}\right)\ . \tag{3.23}$$

3.2.3 Kontinuitätsgleichung

Die Kontinuitätsgleichung für den Ein- und Austrittskanal wird quasi 1-dimensional gelöst. Das bedeutet, dass der radiale Abfluss an Masse nicht über eine radiale Änderung des Geschwindigkeitsfeldes bestimmt wird, sondern über eine über der Oberfläche des Kanals integrierte Wandmassenstromdichte. Ferner führen sowohl die Beladung als auch die Regeneration zu einer inhomogenen Rußverteilung in axialer Richtung des Kanals, die zu einem veränderlichen Querschnitt führt. Folglich muss eine integrale Bilanz für den Eintrittskanal aufgestellt werden, die dann im Punkt z_0 entwickelt und in die differentielle, 1-dimensionale Form überführt wird. Abbildung 3.1 zeigt das zu betrachtende differentielle Element des Eintrittkanals.

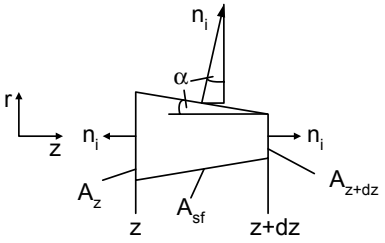


Abb. 3.1: *Bilanzelement des DPFs für den Eintrittskanal*

Die allgemeine Form der integralen Kontinuitätsgleichung [46] lautet wie folgt:

$$\int_V \frac{\partial \rho}{\partial t} \mathrm{d}V + \int_{\partial V} \rho \, w_i \, n_i \, \mathrm{d}A = 0 \; . \tag{3.24}$$

Für den Eintrittskanal 1 ergibt sich folgende Bilanz:

$$\begin{aligned} &\int_{V_1} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t} \mathrm{d}V - \int_{A_{1,z}} \rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, \mathrm{d}A + \int_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} \rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, \mathrm{d}A \\ &+ \int_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1} \, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \mathrm{d}A + \int_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, \sin\alpha \, \mathrm{d}A = 0 \; . \end{aligned} \tag{3.25}$$

Bei der radialen Geschwindigkeit $w^*_{r,1}$ handelt es sich um die Gasleerrohrgeschwindigkeit durch die Wand, die durch eine Integration über der gesamten Mantelfläche (d. h. Festkörper und Pore) bestimmt wird. Als vereinfachende Annahme wird das Abfließen von Masse über die Mantelfläche lediglich in radialer Richtung betrachtet. Diese Annahme ist aufgrund eines kleinen Winkels α gerechtfertigt ($\alpha \ll 90° \Rightarrow \sin\alpha \approx 0$). Unter der Annahme einer konstanten Dichte im Integrationsvolumen und einer auf dem Querschnitt konstanten Geschwindigkeit in axialer Richtung ergibt sich folgender Ausdruck:

$$\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t} \mathrm{d}V_1 - \left(\rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1\right)_z + \left(\rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1\right)_{z+\mathrm{d}z} + \rho_{\mathrm{g},1} \, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0 \; . \tag{3.26}$$

Die Bilanz kann an der Stelle z mit Hilfe der Taylor-Reihe entwickelt werden:

$$\left(\rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1\right)_{z+\mathrm{d}z} = \left(\rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1\right)_z + \frac{\mathrm{d}\left(\rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1\right)_z}{\mathrm{d}z} \mathrm{d}z \; . \tag{3.27}$$

Eingesetzt ergibt sich folgende Bilanz in differentieller Form:

$$\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t} \mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1}{\partial z} \mathrm{d}z + \rho_{\mathrm{g},1} \, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0 \; . \tag{3.28}$$

Mit $\mathrm{d}V_1 = A_1 \, \mathrm{d}z = d^2_{\mathrm{h},1} \, \mathrm{d}z$ und $\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 4 \, d_{\mathrm{h},1} \, \mathrm{d}z$ kann Gl. 3.28 weiter vereinfacht werden:

$$\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t} + \frac{1}{A_1} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1} \, w_{z,1} \, A_1}{\partial z} + \rho_{\mathrm{g},1} \, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \frac{4}{d_{\mathrm{h},1}} = 0 \; . \tag{3.29}$$

Anhand einer Bilanz für die Filterwand, unter der Annahme einer konstanten Temperatur und einer konstanten Dichte des Gases innerhalb dieser, ergibt sich für den stationären Fall folgende Beziehung:

$$\rho_{\mathrm{g},1} \, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \frac{4}{d_{\mathrm{h},1}} = \rho_{\mathrm{g},T_{\mathrm{m}}} \, w^*_{r,2} \frac{4}{d_{\mathrm{h},2}} \tag{3.30}$$

$$\Leftrightarrow \dot{m}_{\mathrm{w},1} \, \cos\alpha \, \frac{4}{d_{\mathrm{h},1}} = \dot{m}_{\mathrm{w},2} \, \frac{4}{d_{\mathrm{h},2}} \; . \tag{3.31}$$

Einsetzen von Gl. 3.30 in Gl. 3.29 vereinfacht die Kontinuitätsgleichung für den Eintrittskanal, da wegen fehlender Ablagerung von Ruß im Austrittskanal keine Querschnitts- und daraus resultierende Geschwindigkeitsänderungen betrachtet werden müssen:

$$\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t} + \frac{1}{A_1}\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z} = -\rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, w^*_{r,2} \frac{4}{d_{\mathrm{h},2}} \ . \tag{3.32}$$

Aufgrund hoher Massenströme in den Kanälen kann die zeitliche Ableitung gegenüber einer Änderung in axialer Richtung vernachlässigt werden. Mit $\dot{m}_{\mathrm{g},1} = \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}$ und $\dot{m}_{\mathrm{w},2} = \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, w^*_{r,2}$ folgt die endgültige Bilanz für den Eintrittskanal:

$$\frac{\partial \dot{m}_{\mathrm{g},1}}{\partial z} + \frac{\dot{m}_{\mathrm{g},1}}{A_1}\frac{\partial A_1}{\partial z} = -\dot{m}_{\mathrm{w},2}\, \frac{4}{d_{\mathrm{h},2}} \ . \tag{3.33}$$

Analog erhält man für den Austrittskanal (keine Querschnittsänderungen):

$$\frac{\partial \dot{m}_{\mathrm{g},2}}{\partial z} = \dot{m}_{\mathrm{w},2}\, \frac{4}{d_{\mathrm{h},2}} \ . \tag{3.34}$$

3.2.4 Komponentenbilanz im Ein-/Austrittskanal

In den Ein- wie auch in den Austrittskanälen gelten folgende Annahmen:

- Die Diffusion ist gegenüber der Konvektion in radialer Richtung vernachlässigbar.
- Es finden keine Gasphasenreaktionen statt.

Unter Berücksichtigung der Annahmen entfällt eine Komponentenbilanz für den Eintrittskanal und entlang des gesamten Kanals sind die Molanteile aller Komponenten konstant.

Auch für den Austrittskanal wird eine Komponentenbilanz nicht gelöst, obwohl sich in axialer Richtung des Filters ein Temperaturprofil ausbildet, was wiederum zu unterschiedlichen Reaktionsraten in der Rußschicht und somit zu unterschiedlichen Molanteilen entlang des Austrittskanals führt. Der Gesamtmolanteil einer Komponente am Filterende wird über eine Integration der Komponentenmassenstromdichten in axialer Richtung bezogen auf den Gesamtmassenstrom berechnet. Diese Integration ist nur unter der Annahme gerechtfertigt, dass ein Mischen der Komponentenmassenstromdichten in Strömungsrichtung vernachlässigt wird. Es wird folglich davon ausgegangen, dass jeder Stromfaden ohne Stoffaustausch vom Austritt aus der Kanalwand bis zum Ende des Filters strömt.

3.2.5 Impulsbilanz

Um den Druckverlust des Dieselpartikelfilters zu bestimmen, wird eine Impulsbilanz für den Eintritts- und Austrittskanal und für die Rußschicht und die Wand aufgestellt. Druckverluste, die beim Einströmen in den Filter (Kontraktion) bzw. Auströmen aus dem Filter (Expansion) entstehen können, werden aufgrund des geringen Beitrags zum Gesamtdruckverlust – maximal 10 % des Gesamtdruckverlusts bei monolithischen Katalysatoren [45] – vernachlässigt [40].

Als erstes wird die Impulsbilanz für den Eintrittskanal aufgestellt und vereinfacht. Wie bereits bei der Kontinuitätsgleichung angewandt, muss hier ebenfalls die veränderliche Querschnittsfläche im Eintrittskanal mitberücksichtigt werden (siehe Abb. 3.1). Es wird eine integrale Bilanz aufgestellt, die dann für die axiale Raumrichtung entwickelt wird. Nach Müller [46] gilt für die Impulsbilanz folgende allgemeine Form in Tensornotation:

$$\int_V \frac{\partial \rho\, w_j}{\partial t} \mathrm{d}V + \int_{\partial V} (\rho\, w_j\, w_i - t_{ji})\, n_i\, \mathrm{d}A = \int_V \rho\, f_j\, \mathrm{d}V \ . \tag{3.35}$$

Folgende Annahmen werden bei der Bilanzierung berücksichtigt:

- Für den Ein- und den Austrittskanal wird jeweils eine 1-dimensionale Bilanzierung mit $j = z$ durchgeführt.
- Die Volumenkräfte f_j werden vernachlässigt.
- Schubspannungen werden mit einem Widerstandsgesetz beschrieben, das Kräfte aufgrund von empirisch ermittelten Widerstandsbeiwerten berücksichtigt.
- Es wird eine über dem Querschnitt konstante, mittlere Geschwindigkeit (1D-Betrachtung) angenommen.

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \int_{V_1} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}}{\partial t} \mathrm{d}V &- \int_{A_{1,z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2\, \mathrm{d}A + \int_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2\, \mathrm{d}A \\
&+ \int_{A_{1,z}} t_{zz,1}\, \mathrm{d}A - \int_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} t_{zz,1}\, \mathrm{d}A - \int_{A_{\mathrm{sf},1}} (t_{zz}\, \sin\alpha + t_{zr}\, \cos\alpha)\, \mathrm{d}A \\
&+ \int_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1} \left(w_{z,1}^2\, \sin\alpha + w_{z,1}\, w_{r,1}^*\, \cos\alpha\right) \mathrm{d}A = 0
\end{aligned} \tag{3.36}$$

Die auf das Fluid wirkenden Normal- und Schubspannungen und Druckkräfte werden wie folgt beschrieben [47]:

$$t_{ji} = \tau_{ji} - \delta_{ji}\, p \ , \tag{3.37}$$

mit dem Einheitstensor, auch Kronecker-δ genannt,

$$\delta_{ji} \begin{cases} 1 & \text{für} \quad i = j \\ 0 & \text{für} \quad i \neq j \end{cases} \quad \text{d. h.} \quad \delta_{ji} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad . \tag{3.38}$$

Eine gesonderte Betrachtung von Schub- und Normalspannungen in allen Dimensionen wird nicht durchgeführt. Betrachtet werden lediglich Druckkräfte und die durch die Wand hervorgerufene Schubspannung:

$$\Rightarrow t_{zz} = -p \quad \wedge \quad t_{zr} = \tau_{zr} \ . \tag{3.39}$$

Einsetzen der Gln. 3.37 - 3.39 in Gl. 3.36 ergibt folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned} \Rightarrow & \int\limits_{V_1} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}}{\partial t} \mathrm{d}V - \int\limits_{A_{1,z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2 \, \mathrm{d}A + \int\limits_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2 \, \mathrm{d}A \\ & + \int\limits_{A_{1,z}} (-p_1) \, \mathrm{d}A - \int\limits_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} (-p_1) \, \mathrm{d}A - \int\limits_{A_{\mathrm{sf},1}} (-p_1 \sin\alpha + \tau_{zr} \cos\alpha) \, \mathrm{d}A \\ & + \int\limits_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1} \left(w_{z,1}^2 \sin\alpha + w_{z,1}\, w_{r,1}^* \cos\alpha \right) \mathrm{d}A = 0 \ . \end{aligned} \tag{3.40}$$

Durchführen der Integration mit der Annahme einer mittleren, konstanten Geschwindigkeit über der Integrationsfläche führt zur differentiellen Form der Impulsbilanz (Gl. 3.41). Als vereinfachende Annahme wird, wie auch bei der Kontinuitätsgleichung, ein Massenstrom in axialer Richtung durch die Rußschicht (inhomogene Rußbeladung) und somit ein Impuls vernachlässigt ($\alpha \ll 90° \Rightarrow \sin\alpha \approx 0$). Sämtliche Masse fließt somit nur in radialer Richtung über die Mantelfläche ab:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}}{\partial t} \mathrm{d}V_1 - \left(\rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2\, A_1 \right)_z + \left(\rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2\, A_1 \right)_{z+\mathrm{d}z} \\ & - \left(p_1\, A_1 \right)_z + \left(p_1\, A_1 \right)_{z+\mathrm{d}z} + p_1 \sin\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} - \tau_{zr} \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} \\ & + \rho_{\mathrm{g},1} w_{z,1}\, w_{r,1}^* \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0 \ . \end{aligned} \tag{3.41}$$

Gleichung 3.41 wird jetzt mit Hilfe der Taylorentwicklung in die differentielle Form überführt:

$$\begin{aligned} \Rightarrow & \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}}{\partial t} \mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}^2\, A_1}{\partial z} \mathrm{d}z + \frac{\partial p_1\, A_1}{\partial z} \mathrm{d}z + p_1 \sin\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} \\ & - \tau_{zr} \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} + \rho_{\mathrm{g},1} w_{z,1}\, w_{r,1}^* \cos\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0 \ . \end{aligned} \tag{3.42}$$

Für die Änderung der Querschnittsfläche gilt folgende Beziehung [46]:

$$\sin\alpha \, \mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = -\frac{\mathrm{d}A_1}{\mathrm{d}z} \mathrm{d}z \ . \tag{3.43}$$

Einsetzen in Gl. 3.42 und Auflösen aller Ableitung führt zu:

$$\begin{aligned}\Rightarrow &\rho_{\mathrm{g},1}\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\mathrm{d}z + \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z \\ &+ p_1\frac{\partial A_1}{\partial z}\mathrm{d}z + A_1\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z - p_1\frac{\partial A_1}{\partial z}\mathrm{d}z - \tau_{zr}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} \\ &+ \rho_{\mathrm{g},1} w_{z,1}\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0\ . \end{aligned} \tag{3.44}$$

Durch Zusammenfassen von Termen mit gleichen Vorfaktoren lässt sich die Kontinuitätsgleichung isolieren

$$\begin{aligned} &\overbrace{w_{z,1}\left(\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\mathrm{d}z + \rho_{\mathrm{g},1}\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\right)}^{\text{Kontinuitätsgleichung, siehe Gl. 3.28}} \\ &\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\, A_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z\right) \\ &+ A_1\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z - \tau_{zr}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0\ , \end{aligned} \tag{3.45}$$

und die Beseitigung der Redundanz führt zu

$$\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\, A_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z\right) + A_1\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z - \tau_{zr}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0\ . \tag{3.46}$$

Der Einfluss der Schubspannungen wird mit folgendem Widerstandsgesetz beschrieben [47]:

$$\tau = \frac{\zeta}{4}\,\frac{\rho\, w^2}{2} = c_{\mathrm{f}}\,\frac{\rho\, w^2}{2}\ . \tag{3.47}$$

Für quadratische Kanäle berechnet sich der Reibungsbeiwert über $c_{\mathrm{f}} = \frac{14{,}23}{Re} = \frac{c_{\mathrm{f},0}}{Re}$ (siehe Abschn. 2.2.3) mit $Re = \frac{w\, L_0}{\nu}$ und dem hydraulischen Durchmesser als charakteristischer Länge. Das Widerstandsgesetz aus Gl. 3.47 vereinfacht sich nach Einsetzen des Reibungswertes und der Definition für die Reynolds-Zahl zu folgendem Ausdruck:

$$\tau_{\mathrm{w}} = \frac{\zeta}{4}\,\frac{\rho\,\bar{w}^2}{2} = c_{\mathrm{f}}\,\frac{\rho\,\bar{w}^2}{2} = \frac{c_{\mathrm{f},0}}{Re}\,\frac{\rho\,\bar{w}^2}{2} \tag{3.48}$$

$$\Leftrightarrow \tau_{\mathrm{w}} = \frac{c_{\mathrm{f},0}}{\frac{\bar{w}\, d_{\mathrm{h}}}{\nu}}\,\frac{\rho\,\bar{w}^2}{2} = c_{\mathrm{f},0}\,\nu\frac{\rho\,\bar{w}}{2\, d_{\mathrm{h}}} = c_{\mathrm{f},0}\,\eta\frac{\bar{w}}{2\, d_{\mathrm{h}}} = \tau_{zr}\ . \tag{3.49}$$

Für das empirische Widerstandsgesetz wird die mittlere Geschwindigkeit parallel zur Mantelfläche verwendet. Der Anteil in axialer Richtung berechnet sich dann wie folgt:

$$w_{z,1} = \bar{w}\,\cos\alpha\ . \tag{3.50}$$

Mit Gl. 3.49 und Gl. 3.50 lässt sich die Impulsbilanz weiter vereinfachen:

$$\begin{aligned} &\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\,A_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z\right) \\ &+ A_1\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z - c_{\mathrm{f},0}\,\eta_{\mathrm{g},1}\frac{\bar{w}}{2\,d_{\mathrm{h},1}}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0 \qquad (3.51) \\ \Leftrightarrow &\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\,A_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z\right) \\ &+ A_1\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z - c_{\mathrm{f},0}\,\eta_{\mathrm{g},1}\frac{w_{z,1}/\cos\alpha}{2\,d_{\mathrm{h},1}}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 0\ . \qquad (3.52) \end{aligned}$$

Ersetzen der differentiellen Volumina ($\mathrm{d}V_1 = A_1\,\mathrm{d}z = d_{\mathrm{h},1}^2\,\mathrm{d}z$) und Flächen ($\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = 4\,d_{\mathrm{h},1}\,\mathrm{d}z$) führt zu der endgültigen Form der Impulsbilanz für den Eintrittskanal:

$$\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial w_{z,1}}{\partial t} + w_{z,1}\,\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\right) + \frac{\partial p_1}{\partial z} = 2\,c_{\mathrm{f},0}\,\eta_{\mathrm{g},1}\frac{w_{z,1}}{d_{\mathrm{h},1}^2}\ . \qquad (3.53)$$

Für den Austrittskanal ergibt sich in äquivalenter Weise folgende Gleichung:

$$\rho_{\mathrm{g},2}\left(\frac{\partial w_{z,2}}{\partial t} + w_{z,2}\,\frac{\partial w_{z,2}}{\partial z}\right) + \frac{\partial p_2}{\partial z} = 2\,c_{\mathrm{f},0}\,\eta_{\mathrm{g},2}\frac{w_{z,2}}{d_{\mathrm{h},2}^2}\ . \qquad (3.54)$$

Für die Durchströmung des Festkörpers bzw. des Rußes wird die Impulsbilanz in stark vereinfachter Form betrachtet. Verwendet wird die von Darcy aufgestellte Filtergleichung, bei der der Druckverlust linear mit dem Massenstrom ansteigt. Bei hohen Durchflussraten wird jedoch ein nicht-linearer Anstieg des Druckverlusts beobachtet, der theoretisch durch wiederholte Expansionen, Kontraktionen und Richtungsänderungen erklärt wird [69]. Um diesen erhöhten Druckverlust zu berücksichtigen, wird die Darcy-Gleichung um einen Term – die Forchheimer-Gleichung – erweitert:

$$\Delta p_{\mathrm{Darcy},j} = \nu_{\mathrm{g}}\,\dot{m}_{\mathrm{w}}\,\frac{\delta_j}{B_j} = \alpha_{\mathrm{w},j}\,\nu_{\mathrm{g}}\,\dot{m}_{\mathrm{w}}\,\delta_j\ , \qquad (3.55)$$

$$\Delta p_{\mathrm{Forchheimer},j} = \frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}^2}{\rho_{\mathrm{g}}}\,\frac{\delta_j}{C_{\mathrm{F}}\,B_j} = \beta_{\mathrm{w},j}\,\frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}^2}{\rho_{\mathrm{g}}}\,\delta_j\ . \qquad (3.56)$$

Die Permeabilität B_j und der Proportionalitätsfaktor der Forchheimer-Gleichung C_{F} bzw. die jeweiligen Durchflussparameter $\alpha_{\mathrm{w},j}$ und $\beta_{\mathrm{w},j}$ müssen für die verschiedenen Filtertypen und den Ruß angepasst werden. Die in den Gln. 3.55 und 3.56 verwendete Massenstromdichte wird anhand der Gasleerrohrgeschwindigkeit berechnet ($\dot{m}_{\mathrm{w}} = w_r^*\,\rho_{\mathrm{g}}$). Der Gesamtdruckverlust ergibt sich dann aus der Summe der beiden Einzeldruckverluste:

$$\Delta p_j = \Delta p_{\mathrm{Darcy},j} + \Delta p_{\mathrm{Forchheimer},j}\ , \qquad (3.57)$$

mit $j = \mathrm{m}$, bezogen auf den Filter, und $j = \mathrm{s}$, bezogen auf den Ruß.

Der Gesamtdruckverlust in radialer Richtung an einer axialen Position ergibt sich dann wie folgt:

$$p_1 - p_2 = \Delta p_\mathrm{s} + \Delta p_\mathrm{m} \ . \tag{3.58}$$

Der Gesamtdruckverlust des Filters ergibt sich anhand einer Differenz der Drücke zwischen Ein- und Austritt:

$$\Delta p_\mathrm{DPF} = p_1 \left(z_\mathrm{min}\right) - p_2 \left(z_\mathrm{max}\right) \ . \tag{3.59}$$

3.2.6 Energiebilanz

Gasphase Eintrittskanal

Die allgemeine Form der Energiebilanz lässt sich mit Hilfe der Redundanz bezüglich Kontinuitätsgleichung und Impulserhaltung in eine Bilanz der inneren Energie überführen [46]. Diese kann verwendet werden, da bei der Modellierung des Dieselpartikelfilters Bilanzen für Masse, Impuls und Energie zeitgleich gelöst werden. Die allgemeine Form der integralen Bilanz für die innere Energie nach Müller [46] lautet:

$$\int\limits_V \frac{\partial \rho\, u}{\partial t} \mathrm{d}V + \int\limits_{\partial V} \left(\rho\, u\, w_i + q_i\right) n_i \, \mathrm{d}A = \int\limits_V t_{ji} \frac{\partial w_j}{\partial x_i} \mathrm{d}V + \int\limits_V \rho\, z \, \mathrm{d}V \ . \tag{3.60}$$

Als erste Vereinfachung wird die Strahlung z vernachlässigt. Des weiteren wird der Wärmeübergang in radialer Richtung durch einen über der Mantelfläche integrierten Wärmestrom beschrieben. Der Beitrag der Viskositätskräfte zur Energiebilanz ist gering und wird vernachlässigt. Der Spannungstensor (siehe Abschn. 3.2.5) wird dann zu $t_{ji} = -p\, \delta_{ji}$. Ferner wird von einer Rotationssymmetrie ausgegangen. Für den Eintrittskanal mit veränderlichem Querschnitt ergibt sich dann folgende integrale Bilanz:

$$\begin{aligned}
&\int\limits_{V_1} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}}{\partial t} \mathrm{d}V - \int\limits_{A_{1,z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1} \, \mathrm{d}A + \int\limits_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1} \, \mathrm{d}A \\
&- \int\limits_{A_{1,z}} \dot{q}_{z,1} \, \mathrm{d}A + \int\limits_{A_{1,z+\mathrm{d}z}} \dot{q}_{z,1} \, \mathrm{d}A + \int\limits_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1} \, \sin\alpha \, \mathrm{d}A \\
&+ \int\limits_{A_{\mathrm{sf},1}} \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w^*_{r,1} \, \cos\alpha \, \mathrm{d}A + \int\limits_{A_{\mathrm{sf},1}} \dot{q}_{r,1} \, \cos\alpha \, \mathrm{d}A \\
&= \int\limits_{V_1} t_{zz,1} \, \frac{\partial w_{z,1}}{\partial z} \, \mathrm{d}V + \int\limits_{V_1} t_{rr,1} \, \frac{1}{r} \, \frac{\partial r\, w_{r,1}}{\partial r} \, \mathrm{d}V.
\end{aligned} \tag{3.61}$$

Geschwindigkeit, Dichte und Druck werden auf dem Querschnitt als homogen angenommen. Ferner kann der radiale Anteil des Spannungstensors vereinfacht in integrierter Form unter Berücksichtigung des Gaußschen Satzes

$$\int_{\delta V} a\, n_i \,\mathrm{d}A = \int_{V} \frac{\partial a}{\partial x_i}\mathrm{d}V \tag{3.62}$$

dargestellt werden:

$$\int_{V_1} t_{rr,1}\,\frac{1}{r}\,\frac{\partial r\, w_{r,1}}{\partial r}\,\mathrm{d}V \Rightarrow -\int_{V_1} p_1\,\frac{1}{r}\,\frac{\partial r\, w_{r,1}}{\partial r}\,\mathrm{d}V \Rightarrow -p_1\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\ . \tag{3.63}$$

Die Wärmeleitung in axialer Richtung kann gegenüber dem konvektiven Wärmetransport vernachlässigt werden. Der radiale Wärmestrom wird durch das Fouriersche Gesetz beschrieben [47], und der darin enthaltene Wärmeübergangskoeffizient über die Definition der Nußelt-Zahl berechnet (siehe Abschn. 2.2.4):

$$\int_{A_{\mathrm{sf},1}} \dot{q}_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A = h_{\mathrm{HT,conv},1}\,\left(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}\right)\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\ . \tag{3.64}$$

Die differentielle Form der Energiebilanz des Eintrittkanals lautet dann vorerst:

$$\begin{aligned}
&\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\,\mathrm{d}z + \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&+ \rho_{\mathrm{g},1}\, u_{\mathrm{g},1}\, w^*_{r,1}\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} + h_{\mathrm{HT,conv},1}\,\left(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}\right)\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&= -p_1\,\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}V_1 - p_1\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\ .
\end{aligned} \tag{3.65}$$

Ersetzen der inneren Energie durch die Beziehung $u = h - p/\rho$ führt zu

$$\begin{aligned}
&\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\,\left(h_{\mathrm{g},1} - p_1/\rho_{\mathrm{g},1}\right)}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\,\left(h_{\mathrm{g},1} - p_1/\rho_{\mathrm{g},1}\right)\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\,\mathrm{d}z\\
&+ \rho_{\mathrm{g},1}\,\left(h_{\mathrm{g},1} - p_1/\rho_{\mathrm{g},1}\right)\, w_{z,1}\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} + \rho_{\mathrm{g},1}\,\left(h_{\mathrm{g},1} - p_1/\rho_{\mathrm{g},1}\right)\, w^*_{r,1}\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&+ h_{\mathrm{HT,conv},1}\,\left(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}\right)\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&= -p_1\,\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}V_1 - p_1\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\ .
\end{aligned} \tag{3.66}$$

Eine weitere Redundanz bezüglich der Kontinuitätsgleichung kann durch Auflösen des Produkts $\rho\,(h - p/\rho)$ und der Ableitungen und Sortieren der Terme nach ρ und h beseitigt werden:

$$\begin{aligned}
&h_{\mathrm{g},1}\overbrace{\left(\frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\,\mathrm{d}z + \rho_{\mathrm{g},1}\, w^*_{r,1}\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\right)}^{\text{Kontinuitätsgleichung, siehe Gl. 3.28}}\\
&\rho_{\mathrm{g},1}\left(\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial t}\mathrm{d}V_1 + w_{z,1}\, A_1\,\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial z}\,\mathrm{d}z\right)\\
&+ \rho_{\mathrm{g},1}\, h_{\mathrm{g},1}\, w_{z,1}\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} + h_{\mathrm{HT,conv},1}\,\left(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}\right)\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&- \frac{\partial p_1}{\partial t}\mathrm{d}V_1 - \frac{\partial p_1\, w_{z,1}\, A_1}{\partial z}\,\mathrm{d}z - p_1\, w_{z,1}\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} - p_1\, w^*_{r,1}\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\\
&= -p_1\,\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}V_1 - p_1\, w^*_{r,1}\,\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}\ .
\end{aligned} \tag{3.67}$$

Mit den folgenden Umrechnungen lässt sich Gl. 3.67 weiter vereinfachen:

$$\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} = -\frac{\mathrm{d}A_1}{\mathrm{d}z}\mathrm{d}z\ , \tag{3.68}$$

$$\frac{\partial p_1\,w_{z,1}\,A_1}{\partial z}\mathrm{d}z = p_1\,w_{z,1}\,\frac{\partial A_1}{\partial z}\mathrm{d}z + A_1\,w_{z,1}\frac{\partial p_1}{\partial z}\mathrm{d}z + A_1\,p_1\frac{\partial w_{z,1}}{\partial z}\mathrm{d}z\ , \tag{3.69}$$

$$\mathrm{d}V_1 = A_1\,\mathrm{d}z\ , \tag{3.70}$$

$$a_{\mathrm{g}} = \frac{\mathrm{d}A_{\mathrm{sf}}}{\mathrm{d}V_{\mathrm{g}}}\ . \tag{3.71}$$

Ferner ist der konvektive Energietransport durch die Mantelfläche in axialer Richtung vernachlässigbar gering gegenüber dem Energietransport in radialer Richtung ($\rho_{\mathrm{g},1}\,h_{\mathrm{g},1}\,w^*_{r,1}\cos\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1} \gg \rho_{\mathrm{g},1}\,h_{\mathrm{g},1}\,w_{z,1}\sin\alpha\,\mathrm{d}A_{\mathrm{sf},1}$, da $\alpha \ll 90° \Rightarrow \sin\alpha \approx 0$):

$$\begin{aligned}&\rho_{\mathrm{g},1}\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial t} + \rho_{\mathrm{g},1}\,w_{z,1}\,\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial z} + a_{\mathrm{g},1}\,h_{\mathrm{HT,conv},1}\,(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}})\\ &= \frac{\partial p_1}{\partial t} + w_{z,1}\frac{\partial p_1}{\partial z}\ .\end{aligned} \tag{3.72}$$

Der Beitrag von Druckunterschieden zur Energiebilanz kann gegenüber den anderen Termen vernachlässigt werden [34]. Darüberhinaus wird aufgrund der hohen Massenströme und den daraus resultierenden hohen Kanalgeschwindigkeiten die zeitliche gegenüber der konvektiven Ableitung vernachlässigt:

$$\rho_{\mathrm{g},1}\,w_{z,1}\,\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial z} = -a_{\mathrm{g},1}\,h_{\mathrm{HT,conv},1}\,(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}})\ . \tag{3.73}$$

Zuletzt wird die Bilanz homogenisiert, d. h. auf das gesamte Katalysatorvolumen bezogen, wobei der Lückengrad ϵ_1 und die spezifische Oberfläche a_1 eingeführt werden. Diese Homogenisierung ist für die Energiebilanz des Gases nicht zwingend notwendig, wird aber aufgrund einer einheitlichen Darstellung (siehe Abschn. 3.2.6 Energiebilanz des Festkörpers) durchgeführt. Unter Verwendung von Gl. 3.7 und 3.15 ergibt sich nach der Homogenisierung folgende Energiebilanz:

$$\epsilon_1\,\rho_{\mathrm{g},1}\,w_{z,1}\frac{\partial h_{\mathrm{g},1}}{\partial z} = -a_1\,h_{\mathrm{HT,conv},1}\,(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}})\ , \tag{3.74}$$

Mit der Vernachlässigung von Druckänderungen kann für die Enthalpie die Beziehung $\mathrm{d}h = c_{\mathrm{p}}\,\mathrm{d}T$ verwendet werden:

$$\epsilon_1\,\dot{m}_{\mathrm{g},1}\,c_{\mathrm{p,g},1}\,\frac{\partial T_{\mathrm{g},1}}{\partial z} = -a_1\,h_{\mathrm{HT,conv},1}\,(T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}})\ , \tag{3.75}$$

mit $\dot{m}_{\mathrm{g},1} = \rho_{\mathrm{g},1}\,w_{z,1}$ als der Massenstromdichte im Eintrittskanal.

Gasphase Austrittskanal

Die Herleitung der Energiebilanz für den Austrittskanal erfolgt in stark verkürzter Form, da diese äquivalent zum Eintrittskanal ist. Querschnittsänderungen müssen

nicht betrachtet werden. Ferner wird bereits zu Anfang die zeitliche Ableitung gegenüber örtlichen Ableitungen aus genannten Gründen vernachlässigt. Ausgangspunkt ist ebenfalls die Bilanz der inneren Energie. Die folgenden Annahmen und Vereinfachungen (siehe auch Abschn. 3.2.6) werden getroffen:

- 1D-Bilanzierung in axialer Richtung,
- Vernachlässigung der Strahlung $\Rightarrow z = 0$,
- Vernachlässigung der Viskositätskräfte $\Rightarrow t_{ji} = \delta_{ij}\, p$,
- Druck über dem Querschnitt wird als konstant angenommen,
- Vernachlässigung von Druckänderungen [34], die nach Umformungen am Ende der Bilanzierung eliminiert werden,
- Rotationssymmetrie,
- radiale Wärmeleitung in integrierter Form mit empirischen Gleichungen $\Rightarrow$ quasi 1D-Bilanz,
- axiale Wärmeleitung ist gegenüber konvektivem Wärmetransport vernachlässigbar,
- zeitliche Ableitung wird gegenüber örtlichen Ableitungen vernachlässigt,
- der aus der Wand ausströmende Enthalpiestrom hat sich bis auf Monolithtemperatur aufgeheizt.

Nach Einsetzen von $u = h - p/\rho$ und Berücksichtigung aller Vereinfachungen und sämtlicher Umformungen (äquivalent zu Abschn. 3.2.6) verbleibt letztendlich eine vereinfachte Enthalpiebilanz:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},2}\, w_{z,2}\, h_{\mathrm{g},2}}{\partial z} - a_{\mathrm{g},2}\, \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, h_\mathrm{w}\, w^*_{r,2} &= a_{\mathrm{g},2}\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_\mathrm{m} - T_{\mathrm{g},2}) \\ \Leftrightarrow \rho_{\mathrm{g},2}\, w_{z,2}\, \frac{\partial h_{\mathrm{g},2}}{\partial z} - a_{\mathrm{g},2}\, \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, h_\mathrm{w}\, w^*_{r,2} + h_{\mathrm{g},2}\, \frac{\partial \rho_{\mathrm{g},2}\, w_{z,2}}{\partial z} &= a_{\mathrm{g},2}\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_\mathrm{m} - T_{\mathrm{g},2}) \ . \end{aligned} \tag{3.76}$$

Die Ableitung der Massenstromdichte $\dot{m}_{\mathrm{g},2} = \rho_{\mathrm{g},2}\, w_{z,2}$ in axialer Richtung kann mit Hilfe der Kontinuitätsgleichung des Austrittskanals (siehe Gl. 3.34) durch $a_{\mathrm{g},2}\, \dot{m}_{\mathrm{w},2} = a_{\mathrm{g},2}\, \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, w^*_{r,2}$ ersetzt werden ($a_{\mathrm{g},2} = (4\, d_{\mathrm{h},2})/d^2_{\mathrm{h},2} = 4/d_{\mathrm{h},2}$):

$$\begin{aligned} \rho_{\mathrm{g},2}\, w_{z,2}\, \frac{\partial h_{\mathrm{g},2}}{\partial z} - a_{\mathrm{g},2}\, \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, h_\mathrm{w}\, w^*_{r,2} + a_{\mathrm{g},2}\, \rho_{\mathrm{g},T_\mathrm{m}}\, h_{\mathrm{g},2}\, w^*_{r,2} & \\ = a_{\mathrm{g},2}\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_\mathrm{m} - T_{\mathrm{g},2}) \ . & \end{aligned} \tag{3.77}$$

Für die Enthalpiedifferenz zwischen der Enthalpie aus der Filterwand und der Enthalpie des Gases kann folgende Beziehung verwendet werden:

$$\left.\frac{\partial h}{\partial T}\right|_p = c_{\mathrm{p,g}}\,(T) \ , \tag{3.78}$$

$$\Rightarrow \frac{h\,(T_\mathrm{m}) - h\,(T_\mathrm{g})}{T_\mathrm{m} - T_\mathrm{g}} = c_{\mathrm{p,g},\tilde{T}_\mathrm{m,g}} \quad \text{mit} \ \ \tilde{T}_\mathrm{m,g} = \frac{T_\mathrm{m} + T_\mathrm{g}}{2} \ . \tag{3.79}$$

Für die Energiebilanz der Gasphase des Austrittkanals ergibt sich daraufhin folgende Bilanz:

$$\dot{m}_{\mathrm{g},2}\, c_{\mathrm{p,g},2}\, \frac{\partial T_{\mathrm{g},2}}{\partial z} = a_{\mathrm{g},2}\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_{\mathrm{m}} - T_{\mathrm{g},2}) + a_{\mathrm{g},2}\, \dot{m}_{\mathrm{w},2}\, c_{\mathrm{p,g},\tilde{T}_{\mathrm{m,g}}}\, (T_{\mathrm{m}} - T_{\mathrm{g},2}) \ , \quad (3.80)$$

mit $\dot{m}_{\mathrm{w},2} = \rho_{\mathrm{g},T_{\mathrm{m}}}\, w^*_{r,2}$. In homogenisierter Form mit $a_2 = \epsilon_2\, a_{\mathrm{g},2}$ erhält man folgende Gleichung:

$$\epsilon_2\, \dot{m}_{\mathrm{g},2}\, c_{\mathrm{p,g},2}\, \frac{\partial T_{\mathrm{g},2}}{\partial z} = a_2\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_{\mathrm{m}} - T_{\mathrm{g},2}) + a_2\, \dot{m}_{\mathrm{w},2}\, c_{\mathrm{p,g},\tilde{T}_{\mathrm{m,g}}}\, (T_{\mathrm{m}} - T_{\mathrm{g},2}) \ . \quad (3.81)$$

Festkörper

Nach der detaillierten Herleitung der Energiebilanzen der Gasphasen wird die Energiebilanz für den Festkörper mit Berücksichtigung aller Annahmen in ihrer endgültigen Form dargestellt. Folgende Annahmen werden bei der Bilanzierung verwendet:

- Mit der Annahme einer Rotationssymmetrie wird eine 2D-Bilanzierung in axialer und radialer Richtung vorgenommen. Für Cordierit-Partikelfilter kann eine Rotationssymmetrie in guter Näherung angenommen werden. Segmentierte Filter (SiC) hingegen bestehen aus einzelnen Segmenten, die durch einen Kleber (Zement) miteinander verbunden werden. Eine Rotationssymmetrie ist nicht gegeben, wird jedoch näherungsweise gesetzt. Die Berücksichtigung des Klebers kann über eine Erhöhung der thermischen Masse um ca. 10 % vereinfacht erfolgen (siehe Abschn. 5.5).
- Vernachlässigung der Strahlung: $\Rightarrow \rho\, z = 0$.
- Vernachlässigung der thermischen Masse des Rußes: $\rho_{\mathrm{m}} \approx 30\, \rho_{\mathrm{s}}$ und $V_{\mathrm{m}} > V_{\mathrm{s}}$.
- Die Bilanz muss in radialer Richtung homogenisiert werden, da entlang des Radius ein steter Phasenwechsel zwischen Gas- und Festkörperphase stattfindet. Die Verwendung einer effektiven radialen Wärmeleitfähigkeit wird zwingend notwendig.
- Beiträge von Druckänderungen aufgrund von Kontraktion und Expansion zwischen ein- und austretendem inneren Energiestrom werden vernachlässigt: $\Rightarrow u = h$.
- Der einströmende Enthalpiestrom heizt sich bis auf Monolithtemperatur auf.

$$\begin{aligned}(1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}})\, \rho_{\mathrm{m}}\, c_{\mathrm{p,m}}\, \frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial t} &= a_1\, h_{\mathrm{HT,conv},1}\, (T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}) \\ &+ a_2\, \dot{m}_{\mathrm{w},2}\, c_{\mathrm{p,g},\tilde{T}_{\mathrm{m,g}}}\, (T_{\mathrm{g},1} - T_{\mathrm{m}}) \\ &+ a_2\, h_{\mathrm{HT,conv},2}\, (T_{\mathrm{g},2} - T_{\mathrm{m}}) + (1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}})\, \frac{\partial}{\partial z} \left(k_{\mathrm{m,ax}} \frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial z} \right) \\ &+ (1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}})\, \frac{1}{r}\, \frac{\partial}{\partial r} \left(r\, k_{\mathrm{m,r}} \frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial r} \right) + \dot{q}^*_{\mathrm{R}} \end{aligned} \quad (3.82)$$

Die effektive, radiale Wärmeleitfähigkeit $k_{\mathrm{m,r}}$ wird mit Hilfe von Gl. 2.25 (siehe Abschn. 2.2.4) aus der axialen Wärmeleitfähigkeit berechnet.

3.2.7 Reaktionen

Allgemein wird zwischen zwei verschiedenen Regenerationsarten unterschieden:

1. aktive Regeneration,
2. passive Regeneration.

Bei der aktiven, d. h. der rein thermischen Regeneration mit O_2, die bei Temperaturen oberhalb von 500 - 600°C stattfindet [38, 50], werden zwei Reaktionstypen unterschieden: die vollständige Reaktion (Gl. 3.83) mit CO_2 als Reaktionsprodukt und die unvollständige Reaktion (Gl. 3.84) mit CO als Reaktionsprodukt [38, 40]:

$$\mathrm{C} + \mathrm{O_2} \rightharpoonup \mathrm{CO_2} \ , \tag{3.83}$$

$$\mathrm{C} + \frac{1}{2}\mathrm{O_2} \rightharpoonup \mathrm{CO} \ . \tag{3.84}$$

Die Light-Off Temperatur der passiven Regeneration mit NO_2 liegt deutlich unter der der thermischen bei ca. 250°C [50]. Auch hier wird zwischen vollständiger und unvollständiger Reaktion (Gl. 3.85 und Gl. 3.85) unterschieden [40]:

$$\mathrm{C} + 2\,\mathrm{NO_2} \rightharpoonup \mathrm{CO_2} + 2\,\mathrm{NO} \ , \tag{3.85}$$

$$\mathrm{C} + \mathrm{NO_2} \rightharpoonup \mathrm{CO} + \mathrm{NO} \ . \tag{3.86}$$

Zur Bestimmung der Reaktionsgeschwindigkeit wird folgender Ansatz verwendet:

$$\dot{r}_{j,k,l} = \nu_{j,k,l}\, k_{k,l}\, \rho_k \ , \tag{3.87}$$

$$\dot{r}_{j,k} = \sum_l \dot{r}_{j,k,l} = \sum_l \nu_{j,k,l}\, k_{k,l}\, \rho_k \ , \tag{3.88}$$

mit $k = \mathrm{O_2}$ für die aktive thermische Regeneration mit Sauerstoff, $k = \mathrm{NO_2}$ für die hauptsächlich passive Regeneration und $l = 1$ für die vollständige bzw. $l = 2$ für die unvollständige Oxidation von Ruß. Die Variable j bezeichnet dabei die betrachtete Komponente, deren Umsatz berechnet werden soll. Die Selektivität bezüglich der vollständigen bzw. unvollständigen Reaktion mit $k = \mathrm{O_2}$ oder $k = \mathrm{NO_2}$ als Oxidationsmittel berechnet sich mit Gl. 3.89:

$$S_{j,k,l} = \frac{\dot{r}_{j,k,l}}{\dot{r}_{j,k}} = \frac{\nu_{j,k,l}\, k_{k,l}}{\sum\limits_{l=1}^{2} \nu_{j,k,l}\, k_{k,l}} \ . \tag{3.89}$$

Der Reaktionsgeschwindigkeitskoeffizient wird mit einem Arrhenius-Ansatz wie folgt beschrieben [34, 35]:

$$k_{k,l} = k_{0,k,l}\, T^n \, \exp\left[-\frac{E_{\mathrm{A},k,l}}{\mathrm{R}\,T}\right] \ , \tag{3.90}$$

mit einer Ordnung n bezüglich der Temperatur von Eins [70].

3.2.8 Komponentenbilanz in der Rußschicht

Zur Charakterisierung des Rußabbrands wird eine Komponentenbilanz für die Oxidationsmittel innerhalb der Rußschicht aufgestellt und analytisch gelöst [34]. Auf diese Weise wird eine Diskretisierung der Rußschicht vermieden. Die differentielle Komponentenbilanz in allgemeiner Form lautet:

$$\frac{\partial \rho_j}{\partial t} + \frac{\partial \rho_j \, w_i}{\partial x_i} = \rho_j \pi_j \ . \tag{3.91}$$

Folgende vereinfachende Annahmen werden getroffen:

- Die Temperatur entlang der Rußschicht ist konstant.
- Die Rußdichte ist konstant: ⇒ schrumpfende Dicke der Rußschicht.
- Aufgrund hoher Massenstromdichten wird die zeitliche Änderung der partiellen Dichte vernachlässigt.
- Konvektiver Transport ist nur in Strömungsrichtung x vorhanden. Eine Diffusion/Rückdiffusion wird vernachlässigt.
- Änderung der Massenstromdichte mit sich ändernder Oberfläche des Rußes wird nicht betrachtet (Expansion durch Querschnittsänderung). Vereinfachend wird die Massenstromdichte auf der Wandoberfläche verwendet.
- Betrachtet wird nicht die tatsächliche Geschwindigkeit im Ruß, sondern die Leerrohrgeschwindigkeit.

Unter Berücksichtigung der getroffenen Annahmen erhält man folgende Gleichung:

$$\frac{\mathrm{d}\rho_j \, w_x^*}{\mathrm{d}x} = \rho_j \, \pi_j \ . \tag{3.92}$$

Einsetzen der Gleichungen $\dot{m}_j = \rho_j \, w_x^*$ und $\dot{M}_j = \dot{m}_j \, A_{\mathrm{sf}}$ führt zu

$$\frac{\mathrm{d}\dot{M}_j}{\mathrm{d}x} = \rho_j \, \pi_j \, A_{\mathrm{sf}} \ , \tag{3.93}$$

mit $\rho_j \, \pi_j = \sum_k \dot{r}_{j,k}$ als Reaktionsgeschwindigkeit. Im Folgenden wird Gl. 3.93 zunächst beispielhaft für die Oxidationsmittel – O_2 und NO_2 – vereinfacht und gelöst. Für die Reaktionsgeschwindigkeit $\dot{r}_{j,k}$ gilt somit $j = k$. Mit den Gleichungen

$$\dot{M}_j = \dot{M} \, \xi_j \ , \tag{3.94}$$

$$\xi_j = \tilde{x}_j \, \frac{\tilde{M}_j}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \ , \tag{3.95}$$

$$\rho_j = \tilde{x}_j \, \tilde{M}_j \, c \tag{3.96}$$

kann die Bilanz aus Gl. 3.93 im Teilchenbezugssystem dargestellt werden:

$$\dot{M}_{\mathrm{w}} \frac{\tilde{M}_j}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \frac{d\tilde{x}_j}{dx} = \tilde{x}_j \, \tilde{M}_j \, c \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right) A_{\mathrm{sf}} \tag{3.97}$$

$$\Leftrightarrow \frac{\dot{M}_{\mathrm{w}}}{A_{\mathrm{sf}}} \frac{d\tilde{x}_j}{dx} = \tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \, \tilde{x}_j \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right) \ . \tag{3.98}$$

Zu lösen ist folgende gewöhnliche Differentialgleichung:

$$\frac{d\tilde{x}_j}{dx} = \frac{1}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \, \tilde{x}_j \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right) \ . \tag{3.99}$$

Die allgemeine Lösung lautet wie folgt:

$$\tilde{x}_j \left(x \right) = C_1 \, \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, x \right] \ . \tag{3.100}$$

Unter der Annahme, dass innerhalb des Eintrittskanals keine Gasphasen- oder Oberflächenreaktionen stattfinden und ein Abfluss des Massenstroms durch die porösen Wände die Zusammensetzung (Molanteile) des Gases nicht ändert, kann als Randbedingung ein im Eintrittskanal konstanter Molanteil der Oxidationsmittel angenommen werden (siehe Abschn. 3.2.11).

Es folgt die spezielle Lösung

$$\tilde{x}_j \left(x \right) = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \, \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, x \right] \ . \tag{3.101}$$

Das verbrauchte Oxidationsmittel ergibt sich dann als Differenz von ein- und austretendem Molanteil

$$\Delta \tilde{x}_j = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \left(1 - \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{j,j,1} \, k_{j,1} + \nu_{j,j,2} \, k_{j,2} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, \delta_{\mathrm{s}} \right] \right) \ . \tag{3.102}$$

Für die Reaktionsprodukte des Rußabbrands ergeben sich analog die Gln. 3.103 für CO_2, 3.104 für CO und 3.105 für NO mit $k = O_2$ und NO_2 in den Gln. 3.103 und 3.104:

$$\tilde{x}_{\mathrm{CO_2}} \left(x \right) = \sum_k \tilde{x}_{\mathrm{CO_2,in}} \, \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{\mathrm{CO_2},k,1} \, k_{k,1} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, x \right] \ , \tag{3.103}$$

$$\tilde{x}_{\mathrm{CO}} \left(x \right) = \sum_k \tilde{x}_{\mathrm{CO,in}} \, \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{\mathrm{CO},k,2} \, k_{k,2} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, x \right] \ , \tag{3.104}$$

$$\tilde{x}_{\mathrm{NO}} \left(x \right) = \tilde{x}_{\mathrm{NO,in}} \, \exp \left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}} \, c \left(\nu_{\mathrm{NO,NO_2},1} \, k_{\mathrm{NO_2},1} + \nu_{\mathrm{NO,NO_2},2} \, k_{\mathrm{NO_2},2} \right)}{\dot{m}_{\mathrm{w}}} \, x \right] \ . \tag{3.105}$$

3.2.9 Partikelbilanz

Für die Reaktionsgeschwindigkeit des Rußes kann folgende Reaktionsgleichung aufgestellt werden:

$$\dot{r}_{\mathrm{C},k,l} = \frac{\nu_{\mathrm{C},k,l}}{\nu_{j,k,l}}\,\dot{r}_{j,k,l}\,\frac{\tilde{M}_{\mathrm{C}}}{\tilde{M}_j}\ , \tag{3.106}$$

mit $j = k = \mathrm{O_2}$ bzw. $\mathrm{NO_2}$ und $l = 1$ für die vollständige bzw. $l = 2$ für die unvollständige Oxidation. Die Summe der Teilreaktionen – vollständig und unvollständig, $\mathrm{O_2}$ und $\mathrm{NO_2}$ als Oxidationsmittel – ergibt dann die gesamte Reaktionsgeschwindigkeit des Rußes

$$\dot{r}_{\mathrm{C}} = \sum_j \sum_l \frac{\tilde{M}_{\mathrm{C}}}{\tilde{M}_j}\,\frac{\nu_{\mathrm{C},j,l}}{\nu_{j,j,l}}\,S_{j,j,l}\,\dot{r}_{j,j}\ . \tag{3.107}$$

Für die Partikelbilanz bzw. Bilanz der Rußbeladung wird die homogenisierte Reaktionsgeschwindigkeit verwendet, was über eine Multiplikation von Gl. 3.107 mit dem Feststofflückengrad des Filters erreicht wird:

$$\dot{r}^* = \dot{r}\ (1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}})\ . \tag{3.108}$$

Das insgesamt verbrauchte Oxidationsmittel berechnet sich über die Differenz aus in die Rußschicht eintretendem und aus der Filterwand austretendem Komponentenmassenstrom an Oxidationsmittel. Dargestellt ist die homogenisierte Form, wobei die Wandmassenstromdichte auf den Austrittskanal bezogen ist:

$$\dot{r}^*_{j,j} = \frac{\dot{M}_{\mathrm{w}}}{A_{\mathrm{sf},2}}\frac{A_{\mathrm{sf},2}}{V_{\mathrm{DPF}}}\frac{\tilde{M}_j}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}}\,\Delta\tilde{x}_j = \dot{m}_{\mathrm{w},2}\,a_2\,\frac{\tilde{M}_j}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}}\,\Delta\tilde{x}_j\ , \tag{3.109}$$

mit $j = \mathrm{O_2}$ bzw. $j = \mathrm{NO_2}$.

Um den Abbrand des Rußes und somit die veränderliche Rußdicke zu bestimmen, wird folgende Partikelbilanz aufgestellt:

$$\frac{dM_{\mathrm{p}}}{dt} = \dot{M}_{\mathrm{w}}\,\xi_{\mathrm{p}}\,\eta_{\mathrm{DPF}} + \dot{R}_{\mathrm{C}}\ , \tag{3.110}$$

mit $\dot{R}_{\mathrm{C}} = \dot{r}^*_{\mathrm{C}}\,V_{\mathrm{DPF}}$ dem Rußabbrand und $\dot{M}_{\mathrm{w}}\,\xi_{\mathrm{p}}\,\eta_{\mathrm{DPF}}$ der Rußfilterung.

Eine Darstellung der Partikelbilanz als zeitliche Änderung der Filterbeladung (Masse Ruß pro Filtervolumen) wird durch eine Erweiterung der Massenbilanz aus Gl. 3.110 mit dem Kehrwert des Filtervolumens erreicht:

$$\frac{dSL_{\mathrm{p}}}{dt} = \frac{A_{\mathrm{sf},2}}{V_{\mathrm{DPF}}}\,\dot{m}_{\mathrm{w},2}\,\xi_{\mathrm{p}}\,\eta_{\mathrm{DPF}} + \dot{r}^*_{\mathrm{C}} \tag{3.111}$$

$$= a_2\,\dot{m}_{\mathrm{w},2}\,\xi_{\mathrm{p}}\,\eta_{\mathrm{DPF}} + \dot{r}^*_{\mathrm{C}}\ . \tag{3.112}$$

3.2.10 Reaktionswärme

Die Exothermie des Rußabbrands wird wie folgt berechnet (*Beachte:* $j = k$):

$$\dot{q}^*_{\mathrm{R}} = \sum_j \sum_l \frac{1}{\nu_{j,j,l}} \frac{\dot{r}^*_{j,j,l}}{\tilde{M}_j} \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{j,l} \ . \tag{3.113}$$

Unter Verwendung von Gl. 3.89 und 3.109 erhält man die für die Festkörperbilanz (siehe Gl. 3.82) benötigte Gleichung der homogenisierten Reaktionswärme

$$\dot{q}^*_{\mathrm{R}} = \frac{\dot{m}_{\mathrm{w},2}\, a_2}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \sum_j \sum_l \frac{k_{j,l}}{\sum\limits_{l=1}^{2} \nu_{j,j,l}\, k_{j,l}} \Delta\tilde{x}_j\, \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{j,l} \ . \tag{3.114}$$

3.2.11 Randbedingungen und Lösen des Gleichungssystems

Um das Gleichungssystem zu lösen, werden Randbedingungen für Temperatur, Geschwindigkeit und Druck benötigt. Hierzu müssen die Temperatur des Gases, die Konzentrationen sämtlicher Spezies und der Massenstrom am Eintritt bekannt sein. Zudem kann im Filter ein Temperaturfeld und eine Verteilung der Rußbeladung vorgegeben werden. Mit der vereinfachenden Annahme, dass keine Gasphasenreaktionen im Eintrittskanal stattfinden und die Diffusion gegenüber der Konvektion in radialer Richtung (abfließender Wandmassenstrom) vernachlässigt werden kann, sind die Konzentrationen sämtlicher Spezies im gesamten Eintrittskanal konstant [34]:

$$\tilde{x}_{j,1}\,(z,t) = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}}\,(t) \ . \tag{3.115}$$

Da die Eintrittskanäle am Ausgang und die Austrittskanäle am Eingang verschlossen sind, wird vereinfachend angenommen, dass durch diese Stopfen keine Masse fließt:

$$w_1\,(z_{\max}) = w_2\,(z_{\min}) = 0 \ . \tag{3.116}$$

Berücksichtigt man Gl. 3.116 bei der Energiebilanz des Austrittskanals, erhält man die nächste Randbedingung:

$$T_{\mathrm{g},2}\,(z_{\min}) = T_{\mathrm{m}}\,(z_{\min}) \ . \tag{3.117}$$

Der Druck am Ende des Austrittskanals entspricht dem Umgebungsdruck:

$$p_2\,(z_{\max}) = p_{\mathrm{amb}} \ . \tag{3.118}$$

Wärmeverluste über die Stirnflächen werden vernachlässigt und führen zu folgender Randbedingung:

$$\left.\frac{\partial T_{\mathrm{m}}}{\partial z}\right|_{z=z_{\min},z_{\max}} = 0. \tag{3.119}$$

Um das Gleichungssystem lösen zu können, werden zuerst die Bilanzen zur Beschreibung des Druckverlusts (Gln. 3.55 bis 3.58) so umgestellt, dass man eine Gleichung für den Wandmassenstrom in Abhängigkeit des Druckgefälles zwischen Eintritts- und Austrittskanal erhält. Diese Gleichung wird dann in die Kontinuitätsgleichung und die Energiebilanz eingesetzt. Daraufhin werden die Kontinuitätsgleichung, die Energie- und die Impulsbilanz für die Eintritts- und Austrittskanäle in quasistationärer Näherung gelöst. Man erhält ein gewöhnliches Differentialgleichungssystem. Zeitabhängigkeiten sind jedoch weiterhin aufgrund von Eintrittsmassenstrom und -temperatur vorhanden. Wegen der gemischten Randbedingungen (Gln. 3.116 und 3.118) wird zur Lösung ein „Shooting"-Verfahren verwendet, das iterativ Druck-, Geschwindigkeits- und Temperaturverläufe bestimmt. Die Energiebilanz des Festkörpers und die Partikelbilanz werden unter Berücksichtigung von Gl. 3.119 bzw. Gl. 3.115 zeitlich integriert. Mit einem Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung in axialer Richtung gefolgt von einem Runge-Kutta-Verfahren 2. Ordnung für die zeitliche Integration werden die Bilanzen für jeden Zeitschritt gelöst.

3.3 Modellerweiterungen

3.3.1 Dicke der Rußschicht des Porenrußes

Für den Porenruß gilt folgender Zusammenhang:

$$\frac{\delta_{\mathrm{s,pore}}}{\delta_{\mathrm{m,pore}}} = \frac{V_{\mathrm{s,pore}}}{V_{\mathrm{m,pore}}} \ . \tag{3.120}$$

Das freie Volumen der Pore $V_{\mathrm{m,pore}}$ lässt sich mit Hilfe der Mikroporosität der Wand

$$\epsilon_{\mathrm{m}} = \frac{V_{\mathrm{m,pore}}}{V_{\mathrm{m}}} \tag{3.121}$$

bestimmen. Über die allgemeine Definition der Rußbeladung in Verbindung mit Gl. 3.121 lässt sich ein Ausdruck für das freie Porenvolumen der Wand herleiten:

$$SL_{\mathrm{pore}} = \frac{M_{\mathrm{s,pore}}}{V_{\mathrm{DPF}}} = \frac{M_{\mathrm{s,pore}}}{V_{\mathrm{m}}} \left(1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}}\right) = \frac{M_{\mathrm{s,pore}}}{V_{\mathrm{m,pore}}} \left(1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}}\right) \epsilon_{\mathrm{m}} \tag{3.122}$$

$$\Leftrightarrow V_{\mathrm{m,pore}} = \frac{M_{\mathrm{s,pore}}}{SL_{\mathrm{pore}}} \left(1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}}\right) \epsilon_{\mathrm{m}} \ . \tag{3.123}$$

Anhand der Gln. 3.120 und 3.123, der Definition der Dichte des Porenrußes $\rho_{\mathrm{s,pore}} = M_{\mathrm{s,pore}}/V_{\mathrm{s,pore}}$ und mit $\delta_{\mathrm{m,pore}} = \delta_{\mathrm{m}}$ berechnet sich die Dicke der Rußschicht des Porenrußes wie folgt:

$$\delta_{\mathrm{s,pore}} = \frac{SL_{\mathrm{pore}}}{\rho_{\mathrm{s,pore}}} \frac{\delta_{\mathrm{m}}}{1 - \epsilon_{\mathrm{DPF}}} \frac{1}{\epsilon_{\mathrm{m}}} \ . \tag{3.124}$$

3.3.2 Korrektur des Wandmassenstroms

Bei dieser Modellerweiterung wird bei der Durchströmung des Rußkuchens eine Änderung der Wandmassenstromdichte aufgrund einer Querschnittsänderung (siehe Abb. 3.2) mitberücksichtigt. Bisher wurde eine über der Rußdicke konstante Wandmassenstromdichte angenommen, die dem Wert an der Filteroberfläche entspricht. Diese Annahme ist jedoch nur für sehr geringe Rußbeladung gerechtfertigt.

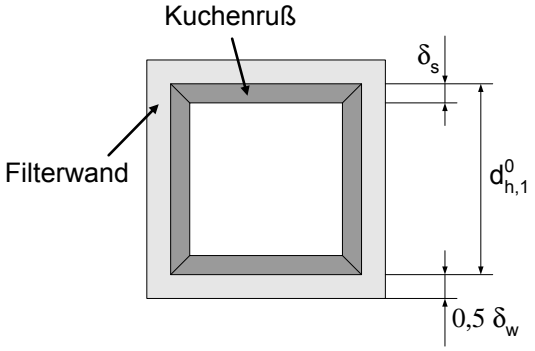


Abb. 3.2: *Beladene Einheitszelle*

Wird die Querschnittsänderung berücksichtigt, müssen drei Terme korrigiert werden:

1. Darcy-Gleichung,
2. Forchheimer-Gleichung,
3. Rußabbrand innerhalb des Rußkuchens.

Innerhalb des Rußkuchens wird die Temperatur in radialer Richtung nicht aufgelöst. Somit kann die Dichte des Gases als konstant betrachtet werden, und für das Verhältnis der Geschwindigkeiten an einer Stelle x und am Ende des Rußkuchens (w_0) ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\frac{w^*(x)}{w_0^*} = \frac{d_{\mathrm{h},1}^0}{d_{\mathrm{h},1}} = \frac{d_{\mathrm{h},1}^0}{d_{\mathrm{h},1}^0 - 2\,x} \ . \tag{3.125}$$

Mit $\dot{m} = \rho_{\mathrm{g}}\, w^*$ und Gl. 3.125 kann die Wandmassenstromdichte als Funktion der axialen Koordinate der Rußdicke dargestellt werden:

$$\dot{m}_w(x) = w^*(x)\ \rho_{\mathrm{g}} = w_0^*\, \frac{d_{\mathrm{h},1}^0}{d_{\mathrm{h},1}^0 - 2\,x}\, \rho_{\mathrm{g}} = \dot{m}_{\mathrm{w},2}\, \frac{d_{\mathrm{h},1}^0}{d_{\mathrm{h},1}^0 - 2\,x} \ . \tag{3.126}$$

Darcy-Gleichung

Die Ableitung der Darcy-Gleichung (siehe Gl. 3.55) führt zu folgendem Ausdruck:

$$\frac{\partial p_{\mathrm{Darcy},j}}{\partial x} = \alpha_j\, \nu_{\mathrm{g}}\, \dot{m}_w(x) \ . \tag{3.127}$$

Einsetzen von Gl. 3.126 ergibt für den Rußkuchen:

$$\frac{\partial p_{\mathrm{Darcy,s}}}{\partial x} = \alpha_{\mathrm{s}}\,\nu_{\mathrm{g}}\,\dot{m}_{\mathrm{w},2}\,\frac{d^0_{\mathrm{h},1}}{d^0_{\mathrm{h},1} - 2\,x}\ . \tag{3.128}$$

Nach Integration und Einsetzen der Integrationsgrenzen erhält man die Darcy-Gleichung mit Berücksichtigung der Querschnittsänderung innerhalb des Rußkuchens:

$$\Delta p_{\mathrm{Darcy,s}} = -\alpha_{\mathrm{s}}\,\nu_{\mathrm{g}}\,\dot{m}_{\mathrm{w},2}\,\frac{d^0_{\mathrm{h},1}}{2}\,\ln\left(1 - \frac{2\,\delta_{\mathrm{s}}}{d^0_{\mathrm{h},1}}\right)\ . \tag{3.129}$$

Forchheimer-Gleichung

Die Ableitung der Forchheimer-Gleichung (siehe Gl. 3.56) führt zu Gl. 3.130:

$$\frac{\partial p_{\mathrm{Forchheimer},j}}{\partial x} = \beta_j\,\frac{\left(\dot{m}_w\left(x\right)\right)^2}{\rho_{\mathrm{g}}}\ . \tag{3.130}$$

Nach Einsetzen von Gl. 3.126 folgt für den Rußkuchen:

$$\frac{\partial p_{\mathrm{Forchheimer,s}}}{\partial x} = \beta_{\mathrm{s}}\,\frac{\left(\dot{m}_{\mathrm{w},2}\right)^2}{\rho_{\mathrm{g}}}\,\frac{\left(d^0_{\mathrm{h},1}\right)^2}{\left(d^0_{\mathrm{h},1} - 2\,x\right)^2}\ . \tag{3.131}$$

Eine Integration von Gl. 3.131 und Einsetzen der Integrationsgrenzen führt zur Forchheimer-Gleichung für den Rußkuchen unter Berücksichtigung einer veränderlichen Wandmassenstromdichte:

$$\Delta p_{\mathrm{Forchheimer,s}} = \beta_{\mathrm{s}}\,\frac{\left(\dot{m}_{\mathrm{w},2}\right)^2}{\rho_{\mathrm{g}}}\left(\frac{\left(d^0_{\mathrm{h},1}\right)^2}{2\,\left(d^0_{\mathrm{h},1} - 2\,\delta_{\mathrm{s}}\right)} - \frac{\left(d^0_{\mathrm{h},1}\right)^2}{2\,d^0_{\mathrm{h},1}}\right)\ . \tag{3.132}$$

Rußabbrand innerhalb des Rußkuchens

Um eine veränderliche Wandmassenstromdichte zu berücksichtigen wird Gl. 3.99 mit Gl. 3.126 verknüpft und man erhält:

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{x}_j}{\mathrm{d}x} = \frac{1}{\dot{m}_{\mathrm{w},2}\,\frac{d^0_{\mathrm{h},1}}{d^0_{\mathrm{h},1} - 2\,x}}\,\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}\,c\,\tilde{x}_j\,\left(\nu_{j,j,1}\,k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\,k_{j,2}\right) \tag{3.133}$$

$$\Leftrightarrow \frac{1}{\tilde{x}_j}\,\mathrm{d}\tilde{x}_j = \frac{1}{\dot{m}_{\mathrm{w},2}}\left(1 - \frac{2}{d^0_{\mathrm{h},1}}\,x\right)\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}\,c\,\left(\nu_{j,j,1}\,k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\,k_{j,2}\right)\,\mathrm{d}x\ , \tag{3.134}$$

mit $j = k = \mathrm{O_2}$ bzw. $j = k = \mathrm{NO_2}$. Die Verknüpfung der beiden Gleichungen beinhaltet die Beseitigung einer Redundanz bezüglich der Kontinuitätsgleichung in der Komponentenbilanz, wobei die Lösung der Kontinuitätsgleichung in Form einer

ortsabhängigen Massenstromdichte $\dot{m}_w(x)$ direkt in die bestehende Komponentenbilanz (Gl. 3.99) eingesetzt wird.
Die allgemeine Lösung von Gleichung 3.134 nach unbestimmter Integration lautet:

$$\tilde{x}_j(x) = C_1 \exp\left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}\, c\, (\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2})}{\dot{m}_{\mathrm{w},2}} \left(x - \frac{x^2}{d^0_{\mathrm{h},1}}\right)\right], \tag{3.135}$$

mit der speziellen Lösung

$$\tilde{x}_j(x) = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \exp\left[\frac{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}\, c\, (\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2})}{\dot{m}_{\mathrm{w},2}}\, x \left(1 - \frac{x}{d^0_{\mathrm{h},1}}\right)\right]. \tag{3.136}$$

Vergleicht man Gl. 3.136 mit Gl. 3.101, so ist deutlich zu erkennen, dass durch die Berücksichtigung der Änderung der Wandmassenstromdichte der Term $\left(1 - x/d^0_{\mathrm{h},1}\right)$ mit $x = \delta_{\mathrm{s}}$ innerhalb der Exponentialfunktion hinzukommt. Analog müssen die Gln. 3.103 bis 3.105 der Reaktionsprodukte mit dem Term $\exp\left[\left(1 - x/d^0_{\mathrm{h},1}\right)\right]$ multipliziert werden.

3.3.3 2-Komponenten-Modell

Die Erweiterung des 2-Komponenten-Modells führt zu zwei Änderungen in den bisher betrachteten Gleichungen:

1. des Gesamtdruckverlusts,
2. der Integration der Oxidationsmittel und der Reaktionsprodukte des Rußabbrands.

Abbildung 3.3 zeigt schematisch die Modellvorstellung der Rußablagerung des 2 - Komponenten-Modells, bei der zwischen einer Tiefenfiltration innerhalb der Poren und einer Kuchenfiltration, bei der sich der Ruß als Filterkuchen auf der Wand des Eintrittskanals ablagert, unterschieden wird.

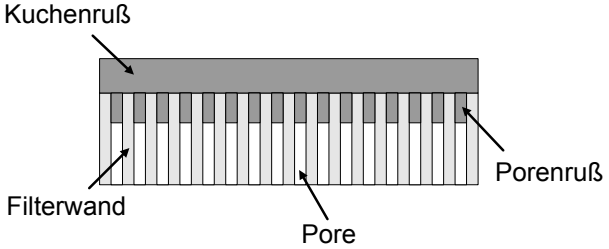


Abb. 3.3: *Rußablagerung des 2-Komponenten-Modells*

Druckverlust

Zur Berechnung des Gesamtdruckverlusts zwischen Ein- und Austrittskanal muss ein weiterer, durch den Porenruß verursachter, Druckverlustterm hinzugefügt werden (siehe Gl. 3.58). Die Druckverlustgleichungen nach Darcy und Forchheimer für den Porenruß lauten dann wie folgt:

$$\Delta p_{\mathrm{Darcy},s,pore} = \nu_{\mathrm{g}} \frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}}{\epsilon_{\mathrm{m}}} \frac{\delta_{\mathrm{s,pore}}}{B_{\mathrm{s,pore}}} = \alpha_{\mathrm{s,pore}} \nu_{\mathrm{g}} \frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}}{\epsilon_{\mathrm{m}}} \delta_{\mathrm{s,pore}} \ , \tag{3.137}$$

$$\Delta p_{\mathrm{Forchheimer},s,pore} = \frac{1}{\rho_{\mathrm{g}}} \left(\frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}}{\epsilon_{\mathrm{m}}}\right)^2 \frac{\delta_{\mathrm{s,pore}}}{C_{\mathrm{F}} B_{\mathrm{s,pore}}} = \beta_{\mathrm{s,pore}} \frac{1}{\rho_{\mathrm{g}}} \left(\frac{\dot{m}_{\mathrm{w}}}{\epsilon_{\mathrm{m}}}\right)^2 \delta_{\mathrm{s,pore}} \ . \tag{3.138}$$

Nach Einfügen des zusätzlichen Druckverlusts muß eine neue Anpassung der Druckverlustparameter durchgeführt werden. Als Gesamtdruckverlust an einer axialen Stelle erhält man dann:

$$p_1 - p_2 = \Delta p_{\mathrm{s,cake}} + \Delta p_{\mathrm{s,pore}} + \Delta p_{\mathrm{m}} \ . \tag{3.139}$$

Die Anpassung eines weiteren Druckverlustparameters für die Rußschicht des Porenrußes ist jedoch nicht notwendig, da anhand von Beladungskurven (siehe Abb. 5.19) das Verhältnis von Druckverlustanstieg zu Rußbeladung für den Poren- und den Kuchenruß bestimmt werden kann:

$$\frac{\mathrm{d}\Delta p_{\mathrm{s,cake}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,cake}}} = C_{\mathrm{pore,cake}} \frac{\mathrm{d}\Delta p_{\mathrm{s,pore}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,pore}}} \ . \tag{3.140}$$

Mit dem für $C_{\mathrm{pore,cake}}$ ermittelten Wert kann dann durch Einsetzen der Druckverlustgleichungen das Verhältnis der Druckverlustparameter des Poren- und des Kuchenrußes bestimmt werden. Hierzu werden zwei vereinfachende Annahmen getroffen:

1. homogene Temperatur in Kuchen- und Porenruß,
2. konstanter Wandmassenstrom innerhalb des Rußkuchens.

$$\alpha_{\mathrm{s,cake}} \nu_{\mathrm{g}} \dot{m}_{\mathrm{w}} \frac{\mathrm{d}\delta_{\mathrm{s,cake}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,cake}}} = C_{\mathrm{pore,cake}} \frac{\alpha_{\mathrm{s,pore}} \nu_{\mathrm{g}} \dot{m}_{\mathrm{w}}}{\epsilon_{\mathrm{m}}} \frac{\mathrm{d}\delta_{\mathrm{s,pore}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,pore}}} \tag{3.141}$$

$$\beta_{\mathrm{s,cake}} \nu_{\mathrm{g}} \dot{m}_{\mathrm{w}}^2 \frac{\mathrm{d}\delta_{\mathrm{s,pore}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,pore}}} = C_{\mathrm{pore,cake}} \frac{\beta_{\mathrm{s,pore}} \nu_{\mathrm{g}} \dot{m}_{\mathrm{w}}^2}{\epsilon_{\mathrm{m}}^2} \frac{\mathrm{d}\delta_{\mathrm{s,pore}}}{\mathrm{d}SL_{\mathrm{s,pore}}} \tag{3.142}$$

Die Druckverlustparameter des Porenrußes können durch Gln. 3.143 und 3.144 ersetzt werden, so dass nur noch die konstanten Faktoren C_α und C_β, die das Verhältnis der Druckverlustparameter von Poren- zu Kuchenruß beschreiben, vorgegeben werden müssen:

$$\alpha_{\mathrm{s,pore}} = C_\alpha \, \alpha_{\mathrm{s,cake}} \ , \tag{3.143}$$

$$\beta_{\mathrm{s,pore}} = C_\beta \, \beta_{\mathrm{s,cake}} \ . \tag{3.144}$$

Eingesetzt in Gl. 3.141 und 3.142 lassen sich die vom verwendeten Filter abhängigen Faktoren

$$C_\alpha = \frac{\epsilon_\mathrm{m}}{C_\mathrm{pore,cake}} \frac{\mathrm{d}SL_\mathrm{s,pore}}{\mathrm{d}\delta_\mathrm{s,pore}} \frac{\mathrm{d}\delta_\mathrm{s,cake}}{\mathrm{d}SL_\mathrm{s,cake}} \tag{3.145}$$

und

$$C_\beta = \frac{\epsilon_\mathrm{m}^2}{C_\mathrm{pore,cake}} \frac{\mathrm{d}SL_\mathrm{s,pore}}{\mathrm{d}\delta_\mathrm{s,pore}} \frac{\mathrm{d}\delta_\mathrm{s,cake}}{\mathrm{d}SL_\mathrm{s,cake}} \tag{3.146}$$

bestimmen.

Rußabbrand

Zusätzlich zum Druckverlust muss auch der Rußabbrand für das 2-Komponenten-Modell angepasst werden. Ausgangsgleichung ist die spezielle Lösung der Änderung des Molanteils der Oxidationsmittel O_2 und NO_2 (Gl. 3.101). Diese Gleichung wird am Ende des Integrationsraumes des Rußkuchens ausgewertet:

$$\tilde{x}_j\left(\delta_\mathrm{s,cake}\right) = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \, \exp\left[\frac{\delta_\mathrm{s,cake}\, \tilde{M}_\mathrm{Exh}\, c\, \left(\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2}\right)}{\dot{m}_\mathrm{w}}\right] . \tag{3.147}$$

Um die Änderung des Molanteils der Oxidationsmittel innerhalb der Pore zu bestimmen, wird Gl. 3.147 in die spezielle Lösung der Komponentenbilanz (Gl. 3.101) eingesetzt und am Ende des Integrationsraumes der Rußschicht des Porenrußes ausgewertet:

$$\begin{aligned}\tilde{x}_j\left(\delta_\mathrm{s,pore}\right) = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \, \exp&\left[\frac{\delta_\mathrm{s,cake}\, \tilde{M}_\mathrm{Exh}\, c\, \left(\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2}\right)}{\dot{m}_\mathrm{w}}\right] \ldots \\ \ldots \exp&\left[\frac{\delta_\mathrm{s,pore}\, \tilde{M}_\mathrm{Exh}\, c\, \chi\, \left(\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2}\right)}{\dot{m}_\mathrm{w}}\right] .\end{aligned} \tag{3.148}$$

Der Faktor χ berücksichtigt hierbei einen möglichen Unterschied zwischen dem Rußabbrand im Rußkuchen und innerhalb der Pore. Als Gesamtdifferenz für die Änderung des Molanteils der Oxidationsmittel, die für die Partikelbilanz und die Reaktionswärme benötigt wird, ergibt sich folgender Ausdruck:

$$\begin{aligned}\Delta\tilde{x}_j = \tilde{x}_{j,\mathrm{in}} \Bigg(1 - \exp&\left[\frac{\delta_\mathrm{s,cake}\, \tilde{M}_\mathrm{Exh}\, c\, \left(\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2}\right)}{\dot{m}_\mathrm{w}}\right] \ldots \\ \ldots \exp&\left[\frac{\delta_\mathrm{s,pore}\, \tilde{M}_\mathrm{Exh}\, c\, \chi\, \left(\nu_{j,j,1}\, k_{j,1} + \nu_{j,j,2}\, k_{j,2}\right)}{\dot{m}_\mathrm{w}}\right]\Bigg) .\end{aligned} \tag{3.149}$$

Bisher nicht betrachtete Querschnittsänderungen im Rußkuchen werden mit Hilfe der Gleichungen aus Abschn. 3.3.2 berücksichtigt. Analog zur Herleitung für die Oxidationsmittel lassen sich die Komponentenbilanzen für die Reaktionsprodukte CO, CO_2 und NO berechnen (siehe Gln. 3.103 bis 3.105).

3.3.4 Schleichende Strömung

Bei den Rechnungs-/Messungsvergleichen zum Partikelfilter, die in Kap. 5 vorgestellt werden, ist aufgefallen, dass beim Druckverlust im Bereich des Aufheizens starke Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment vorhanden sind. Der Druckverlust wird hierbei von der Simulation überschätzt. Dieses Problem kann durch eine erneute Anpassung der Druckverlustparameter nicht behoben werden. Im stationären Bereich bei niedrigen – Anfang der Regeneration – und sehr hohen – Ende der Regeneration (Rußbeladung = 0) – Temperaturen stimmen die Ergebnisse hingegen sehr gut überein (siehe Abb. 5.4). Um eine bessere Anpassung der simulierten Druckverlustkurven an die Realität zu erhalten, muss ein weiterer Effekt modelliert werden, der sich im instationären Bereich bemerkbar macht. Es handelt sich hierbei um die so genannte *schleichende Strömung*, im englischen Sprachraum *slip flow* genannt. Dieser Effekt tritt bei Gasen für den Fall auf, dass die mittlere freie Weglänge der Moleküle im Bereich der Porendurchmesser liegt ($Kn \cong 1$). In diesem Bereich kann weder von einer Kontinuumsströmung ($Kn \ll 1$) noch von einer rein molekularen Strömung ($Kn \gg 1$) ausgegangen werden. Für die Geschwindigkeit an den Wänden gilt nicht mehr die Randbedingung $w = 0$, sondern $w \neq 0$. Es kommt somit zu einem Schlupf an den Wänden, der mit einer molekularen Strömung erklärt werden kann [69]. Abbildung 3.4 zeigt den Übergang von der Kontinuumsströmung (Poiseuille flow) über die schleichende Strömung bis hin zur molekularen Strömung (Free Molecule flow/Knudsen flow) [71].

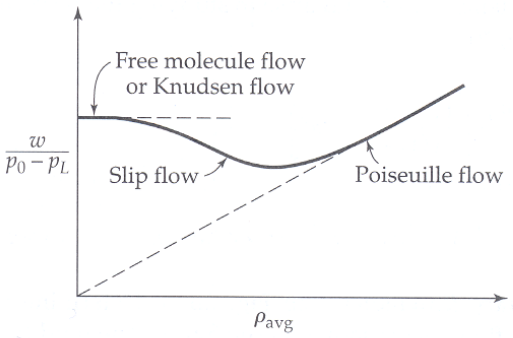


Abb. 3.4: *Kontinuumsströmung, molekulare Strömung und schleichende Strömung [71]* [1]

Anhand von Abb. 3.4 sollen die hier auftretenden Bereiche – der Bereich der Kontinuumsströmung und der der schleichenden Strömung – miteinander verglichen werden. Betrachtet man die Hagen-Poiseulle-Gleichung [47], die eine lineare Abhängigkeit des Druckverlusts von der Strömungsgeschwindigkeit widerspiegelt, so muss im Bereich der Kontinuumsströmung, unter der Annahme eines konstanten Druckverlusts, mit

[1] Transport Phenomena; R. Byron Bird, Warren E. Stewart, Edwin N. Lightfoot; Copyright ©2002 John Wiley & Sons, Inc.; „Reprinted with permission of John Wiley & Sons, Inc.“

steigender Temperatur und somit abnehmender Dichte der Massenstrom und somit die Strömungsgeschwindigkeit verringert werden. Ein konstanter Massenstrom würde bei abnehmender Dichte (steigender Temperatur) zu höheren Strömungsgeschwindigkeiten und somit zu einem höheren Druckverlust führen. Im Bereich der schleichenden Strömung hingegen nimmt, ebenfalls mit der Annahme dass der Druckverlust konstant bleibt, die Geschwindigkeit trotz abnehmender Dichte zu. D. h. der Druckverlust bleibt konstant trotz steigender Durchströmung, was auf einer molekularen Strömung beruht. Die schleichende Strömung kann folglich nicht mehr mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung [47] erklärt werden.

Es gibt unterschiedliche Modelle [66, 72–74] zur Berücksichtigung der schleichenden Strömung. Die Gemeinsamkeit aller Modelle liegt in ihrer Abhängigkeit von der Knudsen-Zahl bzw. der mittleren freien Weglänge der Moleküle. Unterschiede sind bei der Bestimmng der Vorfaktoren wie auch bei Abhängigkeiten der Gleichungen von Einflussgrößen gegeben. In dieser Arbeit wird das einfache Modell nach Pulkrabek et al. [72] verwendet. Die Druckverlustgleichung, bestehend aus Darcy- und Forchheimer-Gleichung (Gln. 3.55 und 3.56), muss für die Rußschicht mit einem Korrekturterm

$$SFC = \frac{1}{1 + C_{\mathrm{SF}}\,\eta_{\mathrm{g}}\sqrt{\frac{T}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}}}} \tag{3.150}$$

multipliziert werden, um die schleichende Strömung zu berücksichtigen. Gleichung 3.150 ist bereits weitestgehend vereinfacht: Die Knudsen-Zahl und die mittlere freie Weglänge wurden eingesetzt und sämtliche Variablen und Faktoren zusammengefasst, so dass letztendlich nur noch ein Parameter zur Anpassung übrigbleibt. Dieser Parameter wurde von Pulkrabek et al. [72] anhand von Messdaten für eine Keramik bestehend aus Aluminiumoxid mit einer Porosität zwischen 38,1 % und 49,8 % ermittelt. Um die Anpassung dieses Parameters anhand von Messungen für Ruß zu vermeiden, wird das verwendete Modell mit dem Modell von Friedlander [73]

$$SFC = \frac{1}{1 + Kn\left(C_{\mathrm{FL},1} + C_{\mathrm{FL},2}\,\exp\left[\frac{-2\,C_{\mathrm{FL},3}}{Kn}\right]\right)}\ , \tag{3.151}$$

das in der Praxis bereits von Konstandopoulos [40] verwendet wird, abgeglichen. Die in Gl. 3.151 verwendete Knudsen-Zahl für umströmte Partikel berechnet sich wie folgt:

$$Kn = \frac{\widehat{\lambda}}{d_{\mathrm{pm}}/2}\ , \tag{3.152}$$

mit der mittleren freien Weglänge

$$\widehat{\lambda} = \frac{\eta}{\bar{p}}\sqrt{\frac{\pi}{2}\frac{R\,T}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}}}\ . \tag{3.153}$$

Abbildung 3.5 zeigt deutlich den Einfluss des Faktors *SFC* auf die Druckverlustparameter und somit auch auf den Druckverlust. Die Implementierung der schleichenden Strömung führt, wie auch bereits an Abb. 3.4 diskutiert, zu einer immensen Verringerung des berechneten Druckverlusts, der mit steigender Temperatur zunimmt.

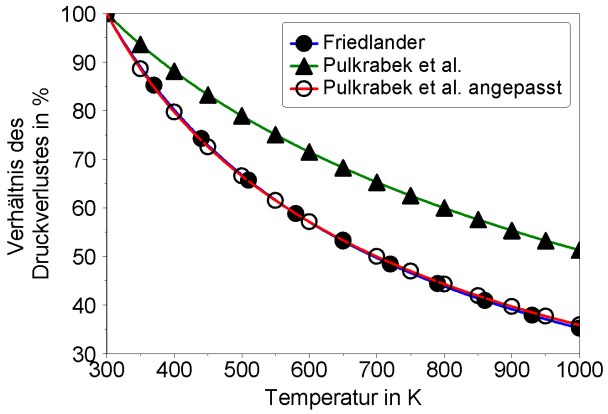


Abb. 3.5: *Verhältnis des Druckverlustes unter Einfluss der schleichenden Strömung*

Mit dieser Methode müssen für weitere Versuche (verschiedene Filter, anderer Motor) lediglich die Permeabilitäten der Filterwand und des Rußes adaptiert werden. Inwiefern eine erneute Anpassung der Parameter der schleichenden Strömung notwendig ist bzw. welches Modell für das Rußsystem am ehesten geeignet ist, könnte anhand von Messdaten geklärt werden. Hierzu müsste ein beladener Filter unter inerten Bedingungen durchströmt und der Druckverlust als Funktion von der Temperatur aufgezeichnet werden. Was jedoch alle Modelle widerspiegeln, ist die Abhängigkeit von der Knudsen-Zahl und somit der temperaturabhängige Verlauf der Druckverlustreduktion.

Um die Parametrierung des Modells von Friedlander [73] vorzunehmen, müssen die Eigenschaften des Rußes wie mittlerer Partikel- bzw. Porendurchmesser und Porosität bekannt sein. Anhand der folgenden Diskussion sollen diese benötigten Eigenschaften des Rußes ermittelt werden.

Ruß wird allgemein in drei verschiedene Klassen unterteilt [70]:

1. elementare Rußkugeln (engl. spherules) – elementarer Kohlenstoff,
2. Partikel – agglomerierte elementare Rußkugeln,
3. Agglomerate – agglomerierte Partikel.

Elementare Rußkugeln (1) haben Partikeldurchmesser im Bereich von 10-50 nm. Diese agglomerieren und bilden Partikel (2) mit einem Durchmesser von 0,1-1 μm und einem mittleren Durchmesser im Bereich von 0,2 μm [45, 62]. Ein Zerteilen dieser Partikel (2) in elementare Rußkugeln (1) ist nicht möglich. Die Porosität dieser

Partikel (2) liegt bei ca. 95 %, wodurch sich die Dichte von ca. 2000 kg/m^3 für elementare Rußkugeln (1) auf ca. 100 kg/m^3 verringert. Diese Partikel (2) fügen sich dann erneut zusammen, zu den sogenannten Agglomeraten (3), deren Größe bei ca. 100 μm liegt [70]. Vergleicht man die für die Simulation verwendete Dichte von 56 kg/m^3 (siehe Abschn. 3.1.2) mit der Dichte der elementaren Rußkugeln (1) ergibt sich eine Porosität von ca. 0,972. Wird die Dichte der Partikel (2) mit der gemessenen Dichte des Rußes verglichen, so erhält man für die Agglomerate (3) einen Lückengrad von ca. 44 %. Dieser Wert liegt im Bereich des mittleren Lückengrads einer Kugelschüttung. Mit der Annahme, dass der gesamte Lückengrad durch zylindrische Poren beschrieben wird, kann der mittlere Porendurchmesser durch Gl. 3.154 beschrieben werden [75].

$$\overline{d}_{\mathrm{h,s}} = \frac{2}{3}\frac{\epsilon}{1-\epsilon}\overline{d}_{\mathrm{pm,s}} \tag{3.154}$$

In der Literatur wird ein mittlerer Porendurchmesser von 0,1 μm für den Ruß verwendet [66]. Dieser stimmt mit dem mittleren Porendurchmesser der Agglomerate (3) überein, der mit dem Lückengrad der Agglomerate (3) und dem mittleren Partikeldurchmesser der Partikel (2) berechnet wird. Folglich wird zur Parametrierung des Modells nach Friedlander [73] der mittlere Partikeldurchmesser für Partikel (2) verwendet.

Kapitel 4

Validierung des monolithischen Katalysators – der Drei-Wege-Katalysator

Im Rahmen der Validierung des Drei-Wege-Katalysators (TWC) werden zunächst Rechnungs-/Messungsvergleiche stationärer Lastpunkte zur Parametrierung der chemischen Teilmodelle verwendet. Im Anschluss wird geprüft, inwiefern das an stationäre Lastpunkte angepasste Modell eine vernünftige Aussage über das Verhalten des Katalysators unter Testbedingungen (Beutelergebnisse eines Zertifizierungszyklus – NEFZ) zulässt. Können beliebige Lastpunkte des Motorkennfeldes zur Parametrierung verwendet werden? Darüber hinaus soll geprüft werden, ob eine Skalierung der Parameter in Abhängigkeit vom Konvertertyp – Messungen von vier verschiedenen Katalysatoren stehen zur Verfügung – möglich ist. Da zur Bearbeitung der genannten Aufgaben viele Simulationen notwendig sind, werden an Stelle der zeitintensiven 2D- 1D-Simulationen durchgeführt.

4.1 Einleitung

Die Messungen wurden auf einem Rollenprüfstand der IAV GmbH in Berlin durchgeführt. Vorab wurde das nötige Messprogramm auf der Straße ermittelt, um kostenintensive Prüfstandsstunden zu minimieren. Als Testfahrzeug diente ein Mittelklassefahrzeug mit einem 1,6 l Motor. Vermessen wurden die vier folgenden Katalysatortypen mit einem Durchmesser von 4,662” (0,1184 m) und einer Länge von 2,941” (0,0747 m):

1. 350/5.5 - JM804 mit 40 g/ft^3 0:6:1 (Pt:Pd:Rh, siehe Abschn. 2.1.2),
2. 350/5.5 - JM804 mit 80 g/ft^3 0:11:1,
3. 900/2 - JM804 mit 40 g/ft^3 0:6:1,
4. 900/2 - JM804 mit 80 g/ft^3 0:11:1.

Die Katalysatoren wurden von Johnson Matthey beschichtet (JM → Beschichtungstyp JM804) und bei der IAV GmbH in Gifhorn gecannt (mit einer Stahlschale ummantelt). Für die Schale (Canning) wurde ein V2A-Edelstahl mit der Bezeichnung 1.4301 verwendet [48] (siehe Anhang C.2). Vor dem Katalysator ist zusätzlich ein Haltering mit der Differenz von Innen- und Außendurchmesser der Schale (4 mm) installiert. Die Stirnfläche des Halterings dient zum Abdecken der Quellmatte, um eine An/- und Durchströmung dieser zu verhindern. Die Abmaße der Einzelteile der Katalysatoren wie Monolith, Schale und Isolierung zeigt Tab. 4.1.

Tab. 4.1: *Geometrie der Versuchsanlage*

	Monolith		Schale	Isolierung
	inch	mm	mm	mm
Länge	2,941	74,7	-	-
Durchmesser außen	4,662	118,4	129	-
Durchmesser innen	-	-	125	-
Dicke	-	-	2	3,3

4.2 Versuchsaufbau

Es werden vier verschiedene Katalysatoren untersucht, wobei einer der Versuchskatalysatoren doppelt vorhanden ist. Bei dem Katalysatortyp 350/5.5 mit 40 g/ft^3 Beladung wird zwischen zwei Anlagentypen unterschieden. Der normale Versuchsaufbau (Versuchsanlage B) ist in Abb. 4.1 anhand einer Skizze dargestellt. Versuchsanlage A hingegen enthält eine größere Anzahl an Thermoelementen, mit denen die Darstellung des Temperaturfeldes höher aufgelöst wird. Ferner dient dieser Versuch zum Testen der Reproduzierbareit der Experimente und der dazugehörigen Simulationen.

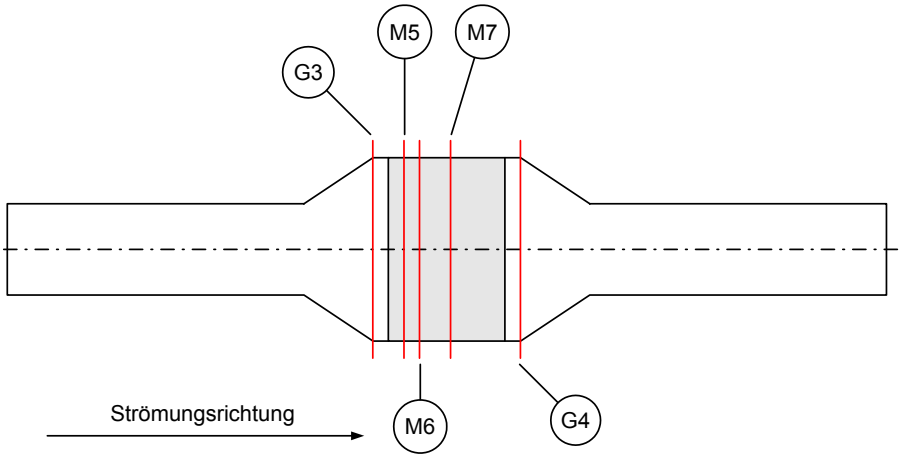
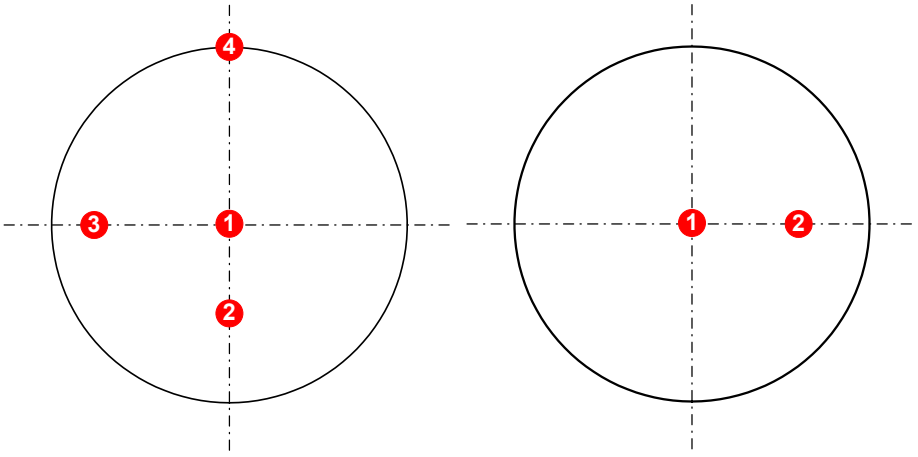


Abb. 4.1: *Skizze der Versuchsanlage des Drei-Wege-Katalysators, Versuchsanlage B*

Zu erkennen sind in Abb. 4.1 u. a. die zwei Thermoelementebenen zum Messen der Gastemperatur vor und nach dem Katalysator (G3 und G4). Hierzu wurden Mantelthermoelemente mit einer Stärke von 1,5 mm verwendet. Für die Bestimmung der Temperatur des Monolithen wurden Mantelthermoelemente mit einer Stärke von 0,5 mm für die hochaufgelöste Variante (Versuchsanlage B) bzw. von 1,5 mm für die Standardvariante (Versuchsanlage A) verwendet. Die Thermoelemente wurden hierbei von hinten durch die einzelnen Kanäle an ihre axiale Position gesteckt.

Die Monolithtemperaturen wurden in drei Ebenen (M5, M6 und M7) gemessen, die in der ersten Hälfte des Katalysators liegen. Als Grund ist zu nennen, dass der Katalysator nach Einsetzen des Light-Offs von vorne nach hinten durchzündet und folglich zum Detektieren des Light-Offs der vordere Bereich interessant ist. Bei der Lage der Gasthermoelemente vor und nach dem Katalysator wurde darauf geachtet, dass diese nicht direkt vor dem Katalysator liegen, sondern ca. 10 mm vor bzw. nach diesem. Somit sollen starke Temperaturschwankungen durch Wirbelbildung, hervorgerufen durch Expansion bzw. Kontraktion der Strömung, vermieden werden. Die folgende Abbildung zeigt die radiale Thermoelementverteilung der Gas- und Monoliththerm oelemente.



(a) Gasphase (b) Monolith

Abb. 4.2: *Lage der Monolith- und Gasthermoelemente*

Die Thermoelementverteilungen der Gasphase (G3 und G4) und die Thermoelementverteilungen der Monolithtemperaturen in den Ebenen M5 und M6 werden in Abb. 4.2 beschrieben. Die Ebene M7 hingegen hat lediglich ein Thermoelement in der Katalysatormitte (TIR 1). Daneben ist in der mittleren Ebene M7 auch ein Thermoelement in die Schale des Katalysators eingelassen. Tabelle 4.2 zeigt die Bezeichnungen und die axialen und radialen Positionen der Thermoelemente der Versuchsanlage B.

Tab. 4.2: *Position der Thermoelemente bei den Drei-Wege-Katalysator-Versuchen*

Thermoelement Bezeichnung	Position am Aufbau axial in mm	radial in mm	Ebene
TvK1	10 vor Kat	0	G3
TvK2	10 vor Kat	30	G3
TvK3	10 vor Kat	44	G3
TvKOb	Kateintritt	Rohrwand	G3
TiK1	10 im Kat	0	M5
TiK2	10 im Kat	35	M5
TiK3	20 im Kat	0	M6
TiK4	20 im Kat	35	M6
TiK5	40 im Kat	0	M7
TiKOb	Katmitte	Rohrwand	M7
TnK1	10 nach Kat	0	G4
TnK2	10 nach Kat	30	G4
TnK3	10 nach Kat	44	G4
TnKOb	Kataustritt	Rohrwand	G4

4.3 Versuchsdurchführung

Vor der eigentlichen Versuchsdurchführung auf dem Rollenprüfstand der IAV GmbH in Berlin wurde das Versuchsprogramm aus Kostengründen bei Testfahrten auf der Straße erstellt. Eine Nachbesserung des Programms in den ersten Prüfstandsversuchen ließ sich jedoch nicht vermeiden, da immer Unterschiede zwischen realem Fahrbetrieb und dem Prüfstand vorhanden sind. Der Versuchsplan gliedert sich in drei Teile:

1. NEFZ,
2. Lambdasprünge – Variation des Brennstoff/Luft-Verhältnisses zum Testen des Sauerstoffspeichers,
3. Lastpunkte.

Als erstes wird ein NEFZ nach Testbedingungen abgefahren, da das Fahrzeug für definierte Kaltstartbedingungen vorkonditioniert sein muss; ca. 12 Stunden bei Raumtemperatur in einem klimatisierten Prüfraum. Im Anschluss folgen die Lambdasprünge und Lastpunkte, bei deren Versuchsdurchführung der Abgasanalyse ein FTP-75 (**F**ederal **T**est **P**rocedure) mit angehängtem SFTP-US06 (**S**upplemental **F**ederal **T**est **P**rocedure – Highway-Cycle, aggressive Fahrweise) vorgegeben wird. Die Vorgabe eines Zertifizierungszyklus ist notwendig, da die Abgasanalyse am Rollenprüfstand nur unter definierten Bedingungen (Zertifizierungszyklus) misst. Es wurde eine

Kombination aus FTP-75 und SFTP-US06 gewählt, die zweimal durchlaufen wird, da somit insgesamt ca. 2000 s pro Messung, verglichen zum NEFZ um ca. 800 s mehr, zur Verfügung stehen. Unter Verwendung der Abgasanalyse wurden die Komponenten THC, CO, CO_2, NO_x und O_2 vor und nach dem Katalysator gemessen. In den Simulationen wurde dann zur Berücksichtigung von schnellen und langsamen THC ein Verhältnis dieser von 3/7[1] vorgegeben, $NO_x = NO$ und $H_2 = 1/3\,CO$ [76] am Eintritt und $H_2 = 0$ am Austritt gesetzt.

4.3.1 NEFZ – Neuer Europäischer Fahrzyklus

Der NEFZ wird vom Prüfstandsfahrer nach einem definierten Programm abgefahren (Abb. 4.3), beginnend mit einem aus vier gleichen Teilen bestehenden Stadtfahrzyklus (ECE), gefolgt von einem Hochgeschwindigkeitsanteil (EUDC). Um einen möglichst realen Fahrbetrieb zu simulieren, wird der nötige Fahrtwind durch ein vor dem Fahrzeug liegendes Gebläse erzeugt. Die verwendete Gebläsekennlinie verläuft linear bis 80 km/h und bleibt danach konstant bei diesem Wert. Folglich gilt die Annahme eines Proportionalgebläses nur bis 80 km/h, und oberhalb dieser Geschwindigkeit geht die Konfiguration in ein Konstantgebläse über. Die Kenntnis der Gebläsekennlinie ist wichtig zur Vorgabe in den Simulationen, um den äußeren Wärmeübergang exakt zu bestimmen.

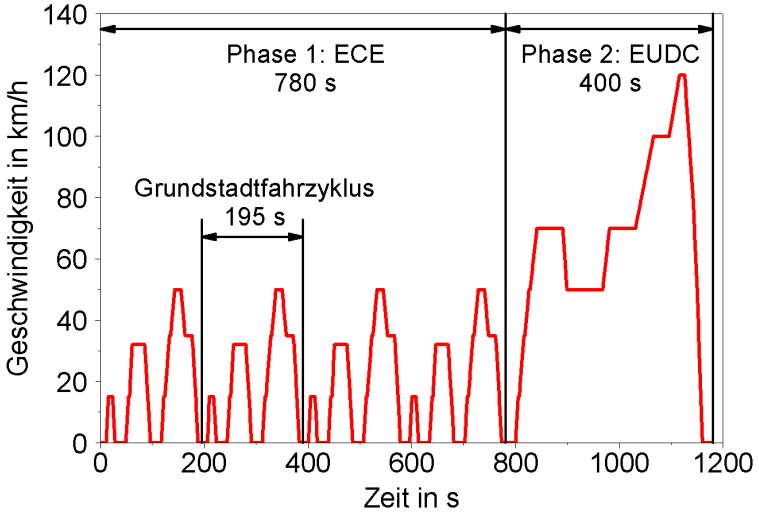


Abb. 4.3: *Neuer Europäischer Fahrzyklus – NEFZ*

Nach Beendigung des NEFZ muss die gesamte Abgasmesstechnik gespült werden, was ca. 5 - 10 min dauert. Außerdem wird das Gebläse auf ein Maximum hochgefahren, um den Katalysator wieder annähernd auf Umgebungstemperatur herunterzukühlen.

[1] Angabe eines Automobilherstellers

4.3.2 Lambdasprünge

Um die Sauerstoffspeicherfähigkeit eines Katalysators zu bestimmen, werden definierte positive und negative Lambdasprünge ($\lambda = M_{\mathrm{a}}/M_{\mathrm{a,st}}$ – Verbrennungsluftverhältnis) bei unterschiedlichen Temperaturen und Brennstoff/Luft-Verhältnissen (Lambdahüben) durchgeführt [44].

Tab. 4.3: *Lambdasprünge: Daten der stationären Lastpunkte aus dem Motorsteuergerät*

Lastpunkte		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**
Gang	-	2	2	2	3	4
WPED	%PED	15	28	50	50	70
RL	%	27	48	68	69	80
$\dot{M}_{\mathrm{Exh}}$	kg/h	28	50	70	117	136
w	km/h	21	21	21	52	52
n_{Mot}	1/min	1690	1690	1690	2750	2750
TvK1	°C	300	410	515	600	660
TiK1	°C	360	470	555	650	710

Variiert wird die Temperatur vor dem Katalysator von 300°C bis 700°C mit einem Inkrement von 100°C und die Höhe des Lambdahubes von $\lambda = 1$ über $\lambda = 1,03$ bzw. 0,97 bis zu $\lambda = 1,06$ bzw. 0,94. Tabelle 4.3 zeigt Daten aus dem Motorsteuergerät und der Temperaturmessung, die zum Anfahren der stationären Lastpunkte der Lambdasprünge notwendig sind.

Tab. 4.4: *Lambdasprünge*

300°C Zeit in s	400°C Zeit in s	500°C Zeit in s	600°C Zeit in s	700°C Zeit in s	λ -
20	20	15	10	10	1
20	20	15	10	10	0,97
20	20	15	10	10	1,03
20	20	15	10	10	0,97
20	20	15	10	10	1,03
20	20	15	10	10	0,94
20	20	15	10	10	1,06
20	20	15	10	10	0,94
20	20	15	10	10	1,06
20	20	15	10	10	1

Ist ein stationärer Punkt angefahren, folgen die eigentlichen Lambdasprünge, deren Abfolge Tab. 4.4 zeigt. Die Zeiten, die jeder Lastpunkt gehalten wird, können variieren. Wichtig ist jedoch, dass das Signal der Lambdasonde nach dem Katalysator

dem der Vorkatsonde gefolgt ist (Stationarität). Um dieses zu gewährleisten, werden während der gesamten Messungen die Daten des Motorsteuergeräts auf einem Notebook mitverfolgt, um gegebenenfalls bei Problemen reagieren zu können.

4.3.3 Lastpunkte

Als letzter Teil des Versuchsprogramms werden stationäre Lastpunkte gefahren. Da auch dieses Messprogramm mit steigender Temperatur durchlaufen wird, muss das Abgassystem erneut heruntergekühlt werden. Anhand dieser Versuche sollen zwei Fragen geklärt werden:

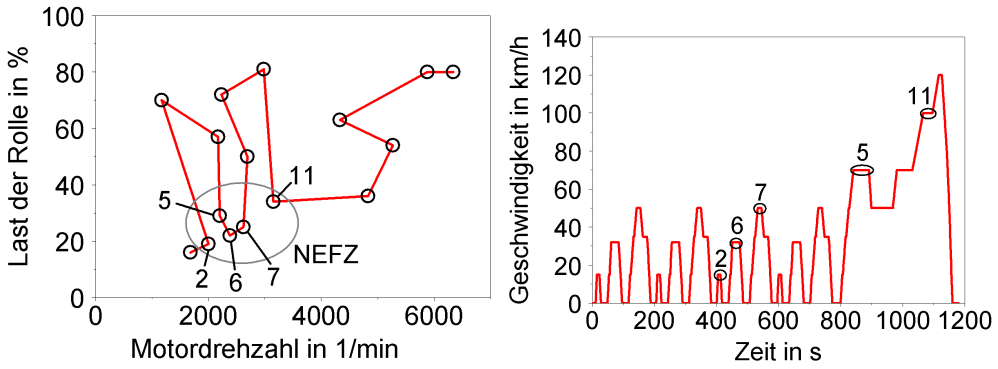
1. Kann mit einer Anpassung der kinetischen Parameter an stationäre Lastpunkte eine Vorraussage von Beutelergebnissen von Zertifizierungszyklen, wie z. B. des NEFZ, die den kumulierten Massen der betrachteten Komponenten am Ende des Tests entsprechen, erreicht werden?
2. Können beliebige stationäre Lastpunkte verwendet werden?

Tabelle 4.5 zeigt die stationären Lastpunkte und die erforderlichen Daten des Motorsteuergeräts. Die hervorgehobenen Lastpunkte sind NEFZ-typische Lastpunkte, die anhand von Drehmoment- und Drehzahlprofilen des NEFZ bestimmt wurden.

Tab. 4.5: *Lastpunkte – Daten aus dem Motorsteuergerät*

Lastpunkt -	Zeit s	n_{mot} 1/min	RL %	w km/h	Gang -	WPED %PED
1	50	1680	16	32	3	7
2	50	2000	19	15	1	11
3	50	1170	70	22	3	100
4	50	2170	57	41	3	38
5	50	2200	29	70	5	19
6	50	2380	22	30	2	16
7	50	2620	25	50	3	18
8	50	2690	50	51	3	34
9	50	2230	72	42	3	100
10	50	2980	81	56	3	100
11	50	3150	34	100	5	25
12	50	4830	36	92	3	30
13	50	5270	54	100	3	43
14	50	4330	63	82	3	45
15	50	5880	80	111	3	100
16	50	6340	80	120	3	100

Abbildung 4.4a verdeutlicht die Lage der Lastpunkte im Kennfeld. Der Unterschied zwischen NEFZ-typischen und -untypischen Lastpunkten ist deutlich zu erkennen. NEFZ-typische Lastpunkte liegen im unteren Drehzahl- und Lastbereich. Ferner wird der NEFZ bei stöchiometrischer Verbrennung d. h. $\lambda = 1$ gefahren. Hingegen wird bei Lastpunkten mit hoher Last unterstöchiometrisch ($\lambda < 1$) verbrannt. Folglich ändern sich abhängig vom Lastbereich sowohl die Abgaszusammensetzung [1] wie auch die Reaktionsbedingungen (fette – $\lambda < 1$ – Umgebung). Es stellt sich die Frage, inwiefern sich ein für einen bestimmten Lastpunktbereich parametriertes Modell auch auf andere Bereiche anwenden lässt.



(a) Lastpunkte im Kennfeld (b) NEFZ-typische Lastpunkte

Abb. 4.4: *Versuchsprogramm der Lastpunkte*

4.4 Bestimmung der Sauerstoffspeicherfähigkeit

Zur Anpassung der kinetischen Parameter der Sauerstoffspeicherreaktionen muss die maximale Sauerstoffspeicherfähigkeit (OSC) des jeweiligen Katalysators bestimmt werden. Hierzu werden die Versuche der Lambdasprünge (Abschn. 4.3.2) verwendet. Abbildung 4.5 zeigt die Signale der Lambdasonden vor und nach Katalysator bei einer Temperatur von ca. 300°C für die Katalysatorvariante 350/5.5 mit 80 g/ft^3 Beladung. Die Be- und Entladungsvorgänge sind deutlich zu erkennen. Bei der Beladung wird eine überstöchiometrische Verbrennung im Motorsteuergerät vorgegeben: Das Lambdasignal vor dem Katalysator springt auf einen Wert oberhalb von 1. Das Lambdasignal nach dem Katalysator folgt verzögert und nähert sich langsam dem stationären Wert des Lambdasignals vor Katalysator an. In der Zeit zwischen Sprung und Übereinstimmung der beiden Lambdasignale wird der Sauerstoffspeicher beladen, d. h. Sauerstoff eingelagert (Wechsel von Ce^{3+} zu Ce^{4+}). Im Gegensatz dazu wird bei Vorgabe einer unterstöchiometrischen Verbrennung ein Lambdasignal vor Katalysator kleiner als 1 erzeugt. Das Lambdasignal nach Katalysator verharrt zunächst bei $\lambda = 1$ (Sauerstoffabgabe) und folgt dann dem Lambdasignal vor Katalysator.

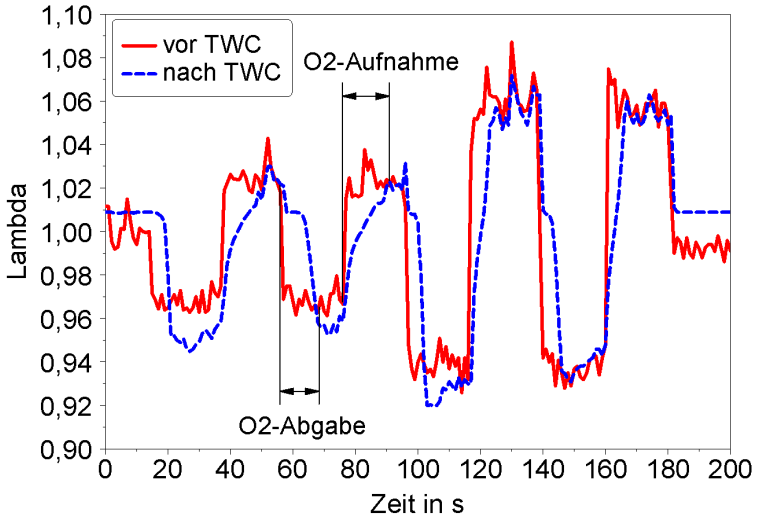


Abb. 4.5: *Lambdasignal der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³*

Mit Hilfe der Zeitintervalle der Be- und Entladung, einer atomaren Bilanz der Sauerstoff-, Wasserstoff- und Kohlenstoffatome und anhand von Erhaltungsgleichungen kann der OSC ermittelt werden. Zuerst erfolgt eine Bilanz der Sauerstoff-, Wasserstoff- und Kohlenstoffatome:

$$\mathrm{C} = \mathrm{CH}_x + \mathrm{CO}_2 + \mathrm{CO} \ , \tag{4.1}$$

$$\mathrm{O} = 2\,\mathrm{O}_2 + 2\,\mathrm{CO}_2 + \mathrm{CO} + \mathrm{H_2O} + \mathrm{NO} + \mathrm{N_2O} + 2\,\mathrm{NO}_2 \ , \tag{4.2}$$

$$\mathrm{H} = x\,\mathrm{CH}_x + 2\,\mathrm{H_2O} + 2\,\mathrm{H}_2 \ . \tag{4.3}$$

Eine integrale Bilanz für den Drei-Wege-Katalysator führt zu folgenden Erhaltungsgleichungen für den Wasserstoff – mit der Annahme, dass dieser vollständig im Katalysator umgesetzt wird – und den Sauerstoff:

$$\Delta\mathrm{H} = 0 \quad \wedge \quad \frac{1}{2}\,\Delta\mathrm{O} = \mathrm{OSC} \ . \tag{4.4}$$

$\mathrm{N_2O}$ und $\mathrm{NO_2}$ werden in der Erhaltungsgleichung für den Sauerstoff (siehe Gl. 4.4) vernachlässigt, was zu folgender vereinfachter Gleichung führt:

$$\mathrm{O} = 2\,\mathrm{O}_2 + 2\,\mathrm{CO}_2 + \mathrm{CO} + \mathrm{H_2O} + \mathrm{NO} \ . \tag{4.5}$$

Um den molaren Anteil an Wasser durch eine Messgröße zu ersetzen, wird die Erhaltungsgleichung $\Delta\mathrm{H} = 0$ (siehe Gl. 4.4) verwendet:

$$\Rightarrow \Delta\mathrm{H_2O} = -\frac{1}{2}\,x\,\Delta\mathrm{CH}_x - \Delta\mathrm{H}_2 \ . \tag{4.6}$$

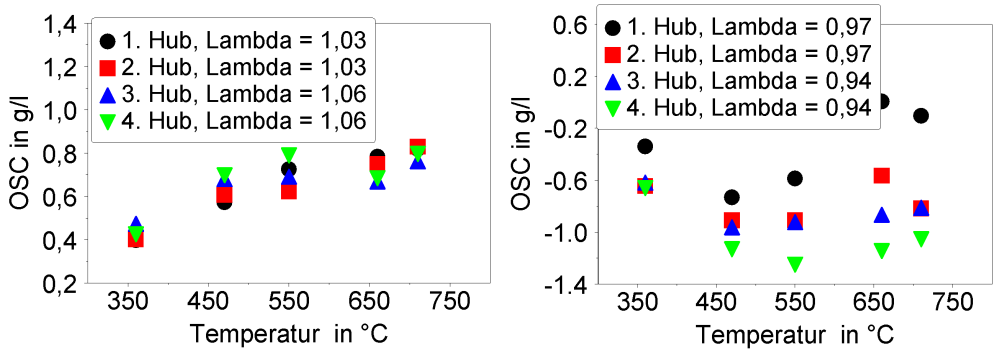
Einsetzen von Gl. 4.6 in Gl. 4.5 mit Berücksichtigung der Definition für den Sauerstoffspeicher (siehe Gl. 4.4) ergibt folgende Lösung:

$$\mathrm{OSC} = \Delta\mathrm{O}_2 + \Delta\mathrm{CO}_2 + \frac{1}{2}\,\Delta\mathrm{CO} + \frac{1}{2}\,\Delta\mathrm{NO} - \frac{x}{4}\,\Delta\mathrm{CH}_x - \frac{1}{2}\,\Delta\mathrm{H}_2 \ . \tag{4.7}$$

Anhand einer Integration von Gl. 4.7 in den bekannten Zeitintervallen der Be- bzw. Entladung kann der OSC für sämtliche Versuche der Lambdasprünge berechnet werden:

$$\mathrm{OSC} = \frac{1}{V_{\mathrm{cat}}} \left(\int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{O_2}}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{O_2}} \,\mathrm{d}t + \int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{CO_2}}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{CO_2}} \,\mathrm{d}t + \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{CO}}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{CO}} \,\mathrm{d}t \right.$$
$$\left. + \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{NO}}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{NO}} \,\mathrm{d}t - \frac{x}{4} \int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{CH}_x}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{CH}_x} \,\mathrm{d}t - \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t} \dot{M}_{\mathrm{g}} \frac{\tilde{M}_{\mathrm{H_2}}}{\tilde{M}_{\mathrm{Exh}}} \Delta\tilde{x}_{\mathrm{H_2}} \,\mathrm{d}t \right) . \tag{4.8}$$

Der OSC kann bei einer Temperatur entweder anhand von positiven oder negativen Lambdasprüngen bestimmt werden. Abbildung 4.6 zeigt den Vergleich der OSC für negative und positive Lambdasprünge bei verschiedenen Temperaturen.

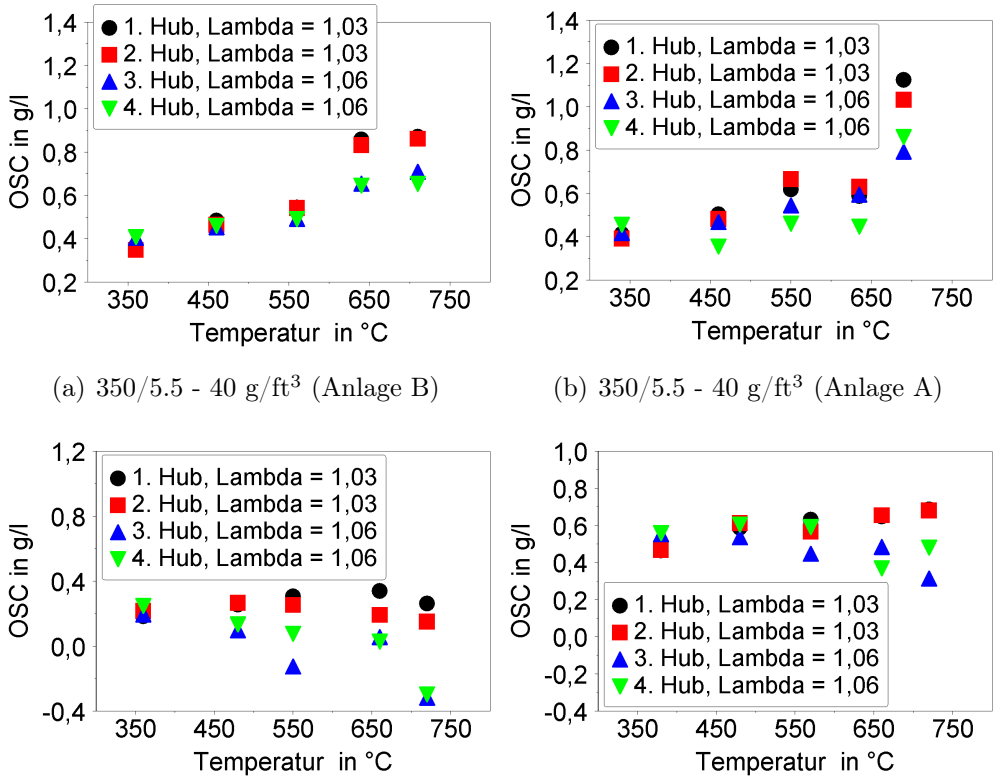


(a) $\lambda > 1$ (b) $\lambda < 1$

Abb. 4.6: *OSC der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³*

Es ist deutlich zu erkennen, dass für negative Lambdasprünge eine größere Streuung vorhanden ist, die Größenordnung der erhaltenen Werte jedoch im gleichen Bereich liegt. Ferner ist kein eindeutiger Einfluss der Höhe des Lambdahubes bei beiden Varianten zu erkennen. Aufgrund der großen Streuung der OSC-Werte der negativen Lambdasprünge werden zur Bestimmung des OSC für die anderen Katalysatorvarianten im Folgenden positive Lambdasprünge verwendet (siehe Abb. 4.7).

Für alle Katalysatorvarianten kann jedoch eine deutliche Temperaturabhängigkeit des OSC festgehalten werden: Mit steigender Temperatur steigt auch die Menge an eingelagertem bzw. abgegebenem Sauerstoff. Dieses Verhalten wurde bereits in Untersuchungen von Balenovic [77] und Lassi [78] beobachtet. Eine Erklärung hierfür ist die mit der Temperatur steigende Mobilität des Sauerstoffs in tieferen Schichten des Washcoats, wodurch ein verstärkter Transport von Sauerstoffmolekülen von oberflächennahen Ceriumplätzen hin zu Ceriumplätzen im Innern des Washcoats erfolgt.



(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (Anlage B)

(b) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (Anlage A)

(c) 900/2 - 40 g/ft^3

(d) 900/2 - 80 g/ft^3

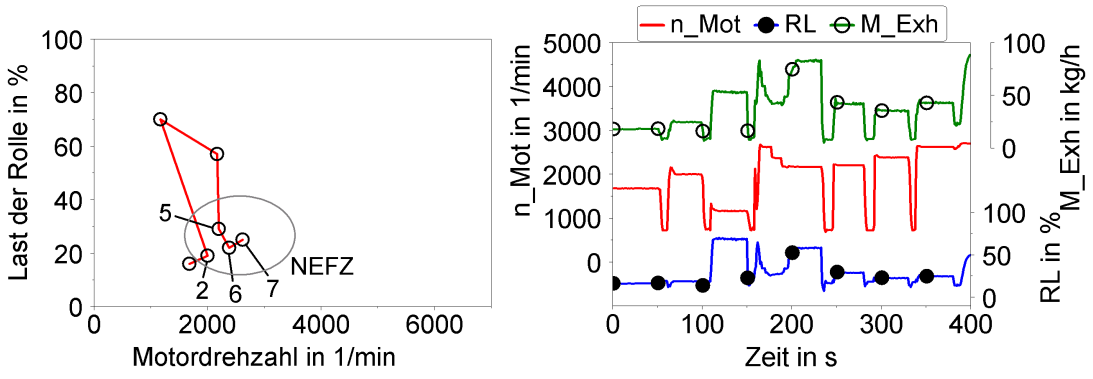
Abb. 4.7: *OSC-Vergleich der verschiedenen Varianten für* $\lambda > 1$

4.5 Anpassung der kinetischen Parameter anhand stationärer Lastpunkte des NEFZ

Die kinetischen Parameter der Modelle sollen anhand von stationären Lastpunkten angepasst werden, um eine Aussage über die Beutelergebnisse des Zertifizierungszyklus NEFZ machen zu können. Zur Anpassung werden die ersten sieben Lastpunkte des Versuchsprogramms verwendet (siehe Abb. 4.8). Bis auf zwei Ausreißer bestehen diese hauptsächlich aus NEFZ-typischen Lastpunkten. Die Ausreißer werden jedoch mitgerechnet, da es durch ein Herausschneiden von Daten zu Unstetigkeiten kommen kann. Die durch die Unstetigkeiten verursachten Sprünge zwischen den Lastpunkten können zwar mitgerechnet werden, könnten jedoch zu einer falschen Anpassung der kinetischen Parameter führen.

Die folgenden Abbildungen werden zeigen, dass kaum ein Einfluss der Ausreißer auf die Ergebnisse zu verzeichnen ist. Bei der Anpassung der kinetischen Parameter an die Auswahl der stationären Lastpunkte werden lediglich die Frequenzfaktoren der Reaktionen verändert. Die Aktivierungsenergien hingegen werden an Literaturda-

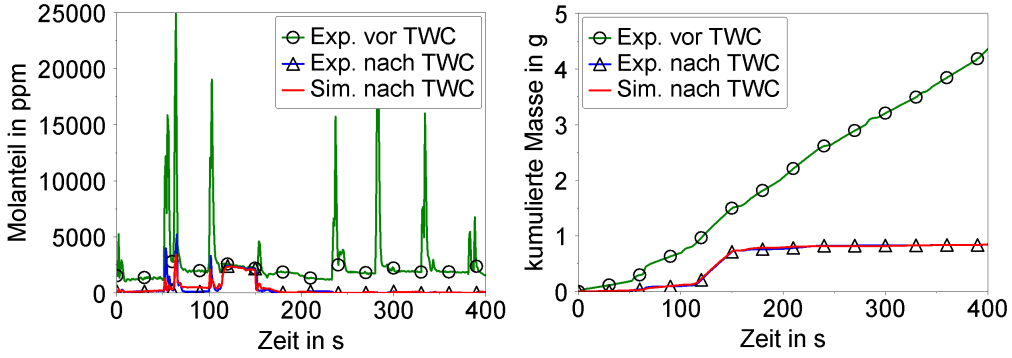
ten angepasst [54, 55]. Werte der Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien der jeweiligen Reaktion und Katalysatorvariante sind in Anhang A.2 dargestellt.



(a) (b)

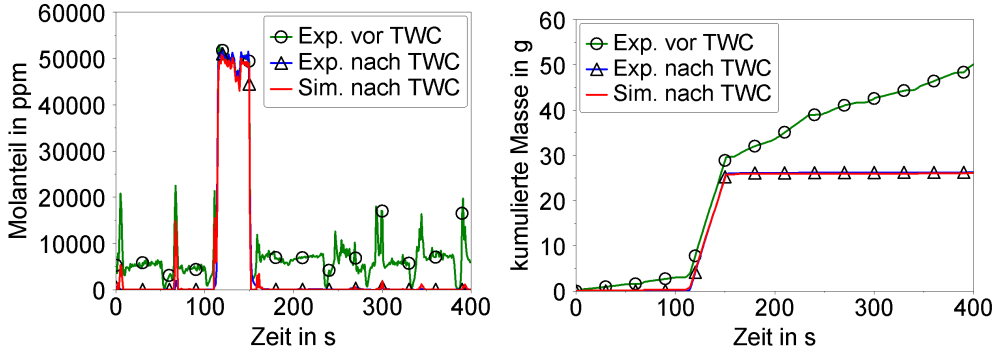
Abb. 4.8: *Stationäre Lastpunkte zur Anpassung der kinetischen Parameter*

Die folgenden vier Abbildungen zeigen die Molanteile und kumulierten Massen der Komponenten THC, CO, NO und O_2 für die Katalysatorvariante 350/5.5 mit 80 g/ft^3 Beladung.



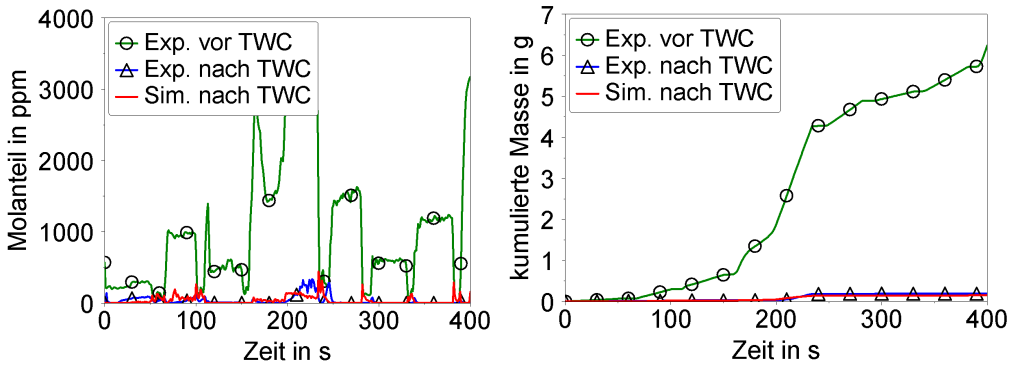
(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.9: *THC – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3*



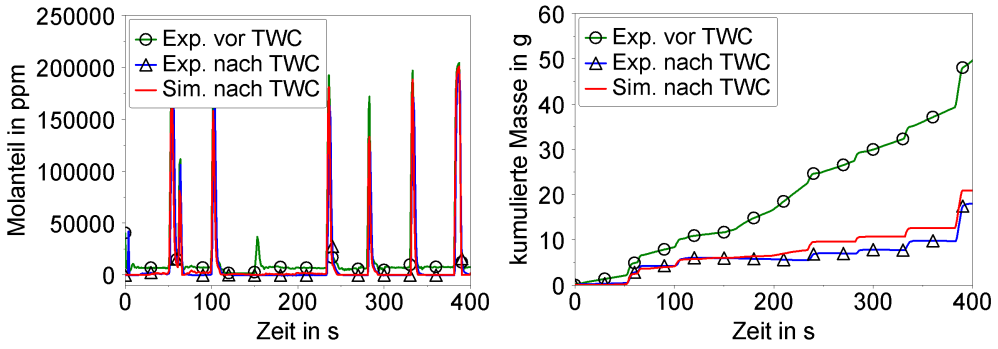
(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.10: *CO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft^3*



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.11: *NO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³*



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

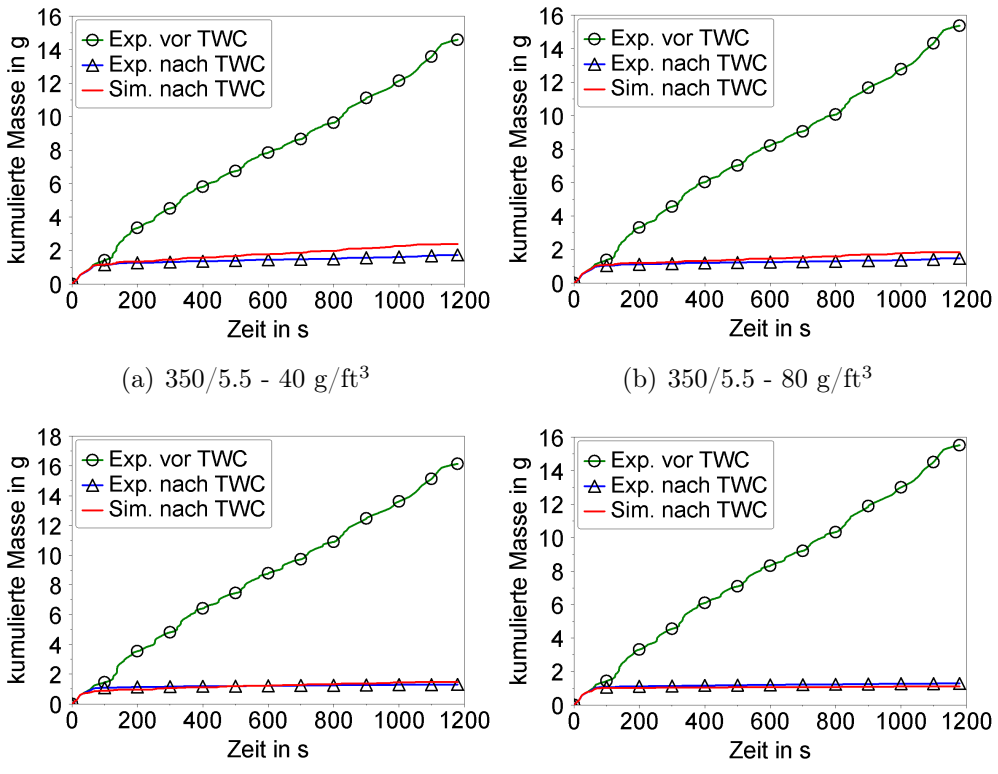
Abb. 4.12: *O_2 – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³*

Betrachtet man die drei reglementierten Komponenten THC, CO und NO (siehe Abb. 4.9 bis 4.11), so sind etwas größere Abweichungen lediglich bei den NO zu verzeichnen. Bei den kumulierten Massen des O_2 hingegen kommt es zu recht großen Abweichungen. Dieses ist vor allem durch die Abweichung zwischen Simulation und Messung im Bereich von ca. 150 bis 200 s zu erklären. Betrachtet man den Last- und Massenstromverlauf in diesem Bereich, sind Unregelmäßigkeiten zu erkennen. Während das Anfahren der Lastpunkte 1 bis 3 und 5 bis 7 unproblematisch verläuft, lässt sich der Lastpunkt 4 nur schwer einstellen. Last und Massenstrom pendeln sich erst nach einiger Zeit auf den gewünschten Wert ein (siehe Abb. 4.8b). Inwiefern diese Unregelmäßigkeit die Messung von O_2 oder die Anpassung der kinetischen Parameter beeinträchtigt, konnte nicht eindeutig geklärt werden. Da jedoch die Abweichung nur beim O_2 auftritt, wird eher von einem Messfehler ausgegangen.

4.6 Simulation des NEFZ

Anhand der Anpassung der kinetischen Parameter für die stationären Lastpunkte soll jetzt geprüft werden, inwiefern die Beutelergebnisse des NEFZ vorausgesagt werden können. Es ist zu beachten, dass im Gegensatz zu Serienmodellen die verwendeten Katalysatoren kürzer sind, so dass es auch nach Einsetzen des Light-Offs zu erwünschten Durchbrüchen – vornehmlich im Hochgeschwindigkeitsteil EUDC – der reglementierten Größen kommen kann. Im Folgenden werden lediglich die kumulierten Massen der Simulationen für die reglementierten Komponenten (siehe Tab. 1.1) dargestellt. Die Molanteile der Simulationen sind in Anhang A dargestellt und diskutiert.

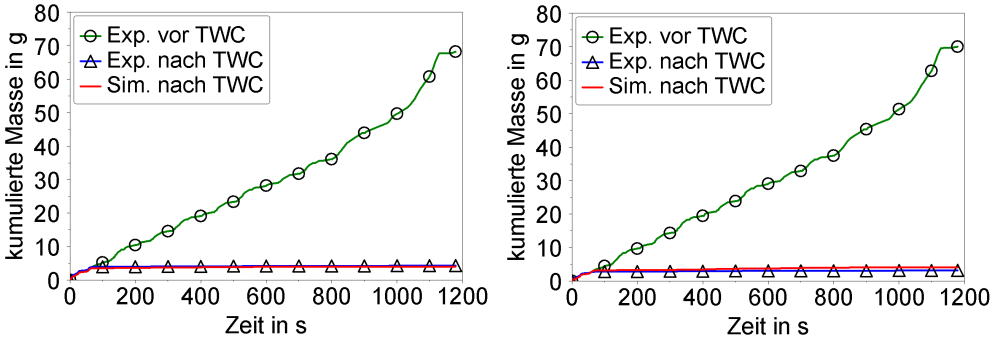
In Abb. 4.13, 4.14 und 4.15 sind die gemessenen kumulierten Massen vor und nach dem Katalysator und die simulierten kumulierten Massen nach dem Katalysator der vier untersuchten Katalysatorvarianten für die Komponenten THC, CO und NO dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass durch eine Anpassung der kinetischen Parameter anhand stationärer, NEFZ-typischer Lastpunkte der gesamte NEFZ gut beschrieben werden kann. Die Beutelergebnisse – das Endergebnis der kumulierten Massen – zeigen lediglich geringe Abweichungen. Zahlenwerte für die Güte der Simulationen sind in Anhang A.6 aufgeführt.



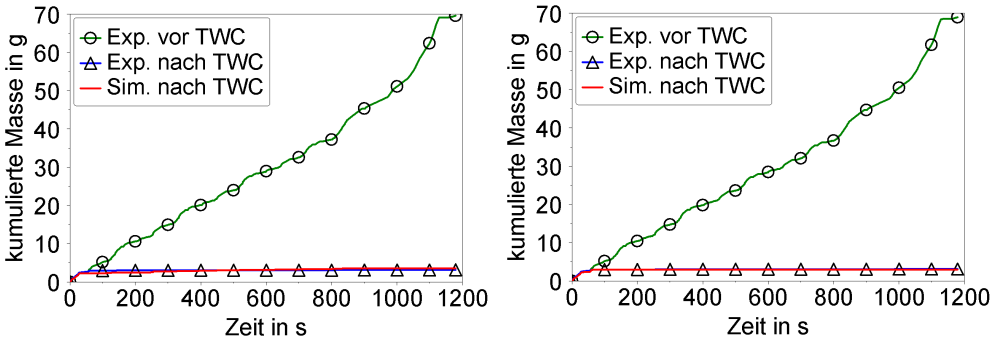
(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. 4.13: *THC – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ*

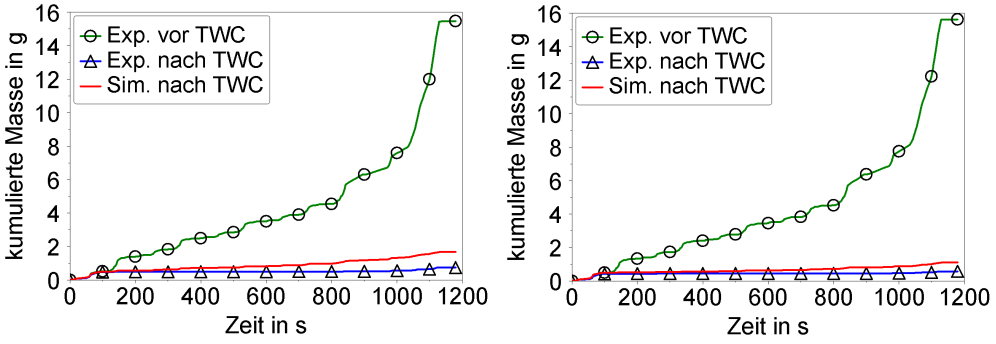


(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

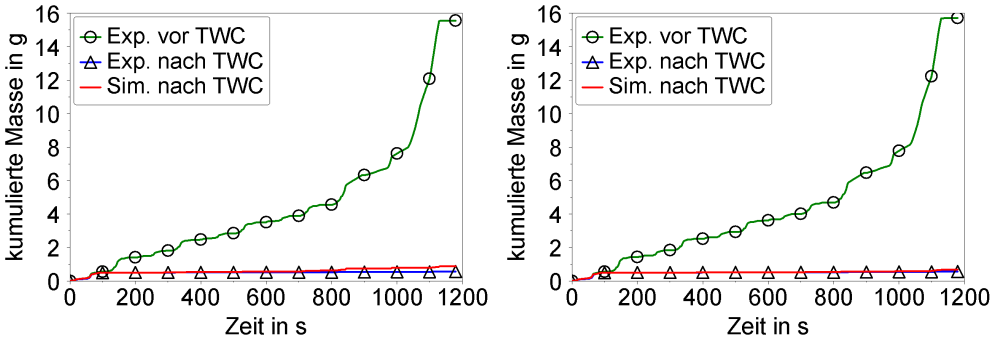


(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. 4.14: *CO – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ*



(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

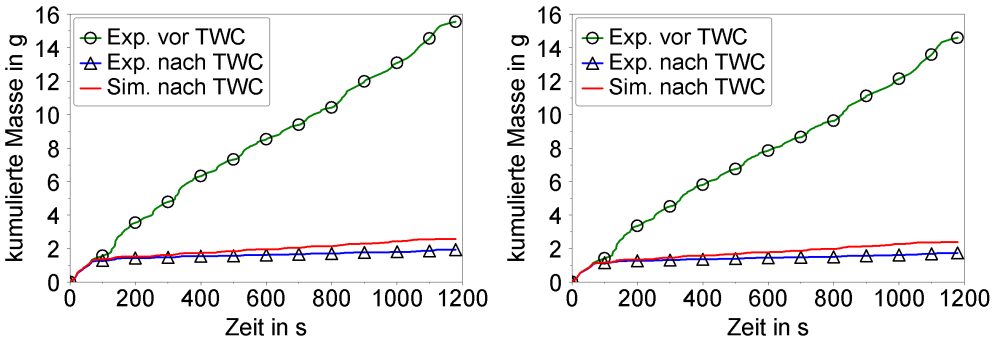


(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. 4.15: *NO – Vergleich der Beutelergebnisse des NEFZ*

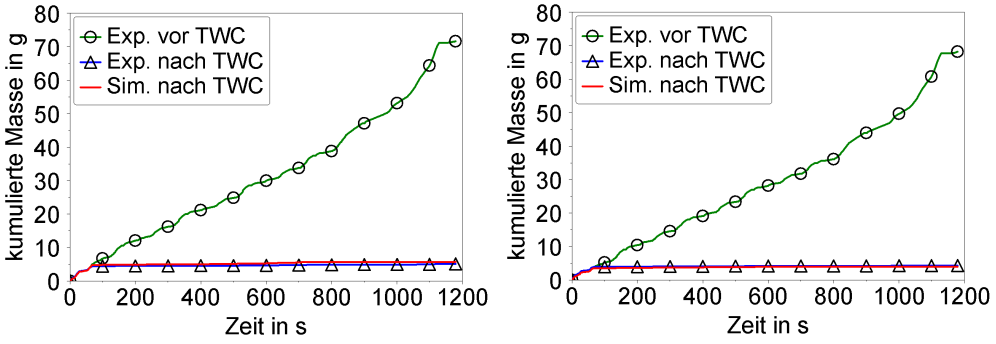
4.7 Reproduzierbarkeit der Ergebnisse

In diesem Abschnitt soll die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse geprüft werden. Die folgenden drei Abbildungen zeigen die kumulierten Massen der reglementierten Größen für zwei baugleiche Katalysatoren. Angepasst wurden die Parameter anhand stationärer, NEFZ-typischer Lastpunkte für die Katalysatorvariante 350/5.5 mit 40 g/ft^3 und einer einfachen Thermoelementverteilung. Mit den kinetischen Parametern wird im Anschluss der NEFZ für die Variante mit erhöhter und normaler Thermoelementverteilung (Versuchsanlage A bzw. B) gerechnet.



(a) Versuchsanlage A (b) Versuchsanlage B

Abb. 4.16: *THC – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ*



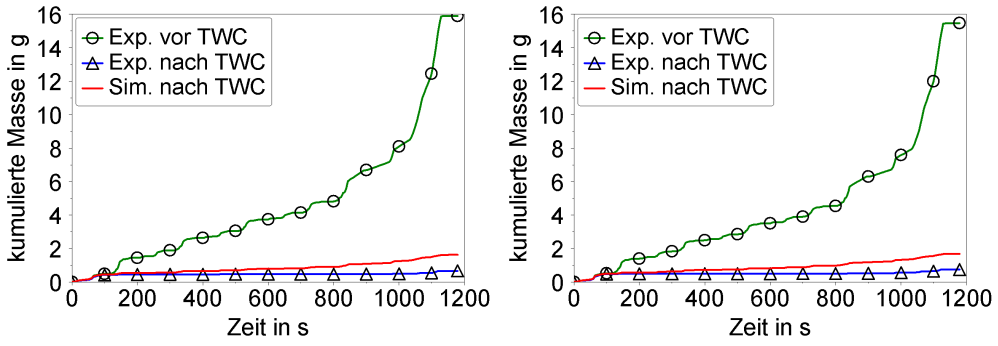
(a) Versuchsanlage A (b) Versuchsanlage B

Abb. 4.17: *CO – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ*

Im Vergleich zwischen den zwei Versuchsanlagen fällt als erstes auf, dass die gemessene kumulierte Masse am Eintritt aller drei Komponenten der Versuchsanlage A (erhöhte Thermoelementverteilung) größer ist. Diese Beobachtung macht deutlich, wie sensibel der gemessene Einlass der Abgaskomponenten ist. Ein Einfluß könnte durch verschiedene Prüfstandsfahrer, unterschiedlichen Kraftstoff und schon geringste Abweichungen in der Messtechnik auftreten.

Vergleicht man die gerechneten Verläufe der kumulierten Massen beider Varianten, so kann eine sehr gute Übereinstimmung bei allen reglementierten Komponenten

festgestellt werden. Als Fazit kann daraus geschlossen werden, dass die angepassten kinetischen Parameter nicht nur für den einen bei den Versuchen verwendeten Katalysator, sondern für sämtliche Katalysatoren dieses Typs gelten. Die Ergebnisse können für verschiedene Katalysatoren der gleichen Baureihe reproduziert werden.



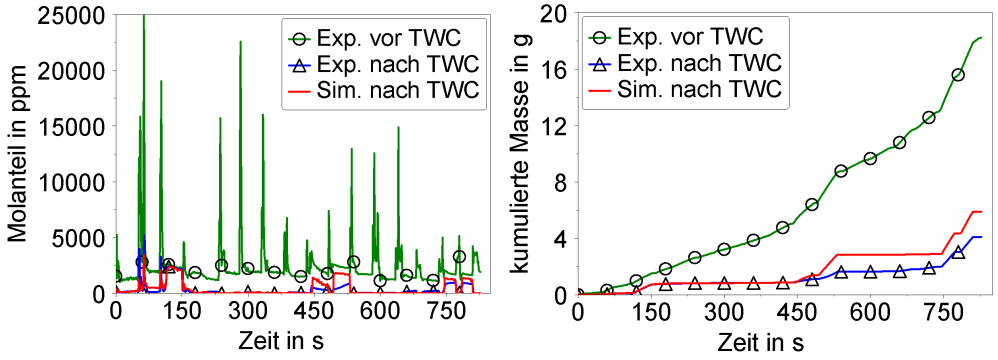
(a) Versuchsanlage A (b) Versuchsanlage B

Abb. 4.18: *NO – Reproduzierbarkeit der Beutelergebnisse des NEFZ*

4.8 Anpassung der kinetischen Parameter anhand NEFZ-untypischer Lastpunkte

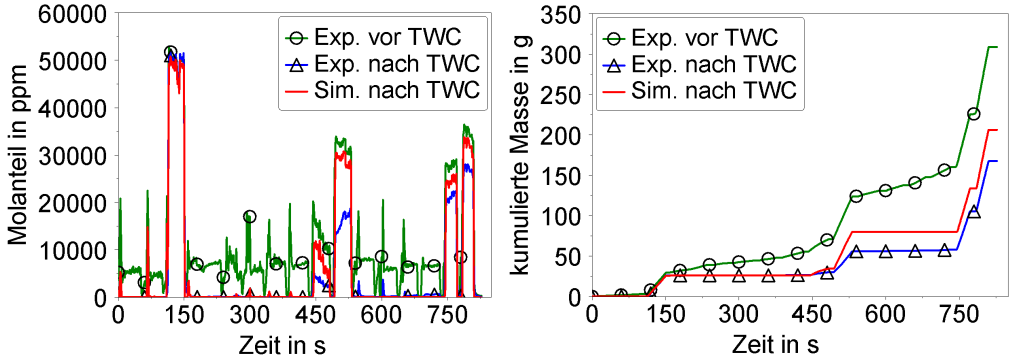
In diesem Abschnitt soll auf die Problematik bezüglich der Wahl der stationären Lastpunkte zur Anpassung der kinetischen Parameter eingegangen werden. Für die bisher gezeigten Ergebnisse wurde zur Anpassung ein Zyklus aus vorwiegend NEFZ-typischen Lastpunkten gewählt. Sowohl die Anpassung als auch die anschließende Berechnung der Beutelergebnisse des NEFZ weisen nur geringe Abweichungen auf.

Die folgenden Abbildungen zeigen eine Anpassung der kinetischen Parameter an einen Zyklus mit insgesamt 16 Lastpunkten (siehe Tab. 4.5). Hierbei sind weitaus mehr NEFZ-untypische Lastpunkte vorhanden. Starke Abweichungen sind vor allem für die THC und das CO zu verzeichnen, wobei diese im Bereich hoher Lasten auftreten (siehe Abschn. 4.5). In diesen Bereichen kommt es zu einem Überströmen (Durchbrüche bei den Molanteilen) des Katalysators. Die angepassten kinetischen Parameter bilden diese Durchbrüche jedoch nicht gut genug ab, wodurch es bei der Simulation zu einem zu starken Überströmen kommt. Eine Vergrößerung der kinetischen Parameter (Anhebung des Frequenzfaktors) würde zwar zu einem verstärkten Umsatz in diesen Bereichen führen, jedoch würde der Umsatz im Bereich NEFZ-typischer Lastpunkte überbewertet werden. Betrachtet man die ersten 400 s, so käme es folglich bei der Simulation zu einem Unterschreiten der kumulierten Massen der THC und des CO.



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.19: *THC – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³ NEFZ-untypischer Lastpunkte*



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.20: *CO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³ NEFZ-untypischer Lastpunkte*

Erklärt werden kann die Abweichung zwischen Simulation und Experiment für die THC anhand der „Steam-Reforming“-Reaktion

$$\mathrm{C}_x\mathrm{H}_y + x\,\mathrm{H_2O} \rightharpoonup x\,\mathrm{CO} + \left(x + \frac{y}{2}\right)\,\mathrm{H_2}\ , \tag{4.9}$$

die in den hier verwendeten Modellen nicht berücksichtigt wird. Die Reformierung von Kohlenwasserstoffen mit Wasserdampf kommt vor allem bei fetten (unterstöchiometrischen) Verbrennungsverhältnissen ab einer Temperatur von ca. 300°C zum Tragen. Ohne Berücksichtigung der „Steam-Reforming“-Reaktion kann es zu einer Verminderung der Konversion von bis zu 20 % kommen [54]. Betrachtet man die kumulierten Massen, so treten Abweichungen im Bereich 450 - 550 s und 750 - ca. 820 s auf. In diesen Bereichen liegt die Temperatur vor dem Katalysator oberhalb von 300°C und das stöchiometrische Verbrennungsluftverhältnis λ nimmt Werte zwischen 0,9 und 0,95 (siehe 2 und 3 in Abb. 4.21) an. Im Gegensatz dazu tritt im Bereich von ca. 100 - 150 s keine Abweichung zwischen Simulation und Rechnung auf. Auch hier liegt ein fettes Verbrennungsluftverhältnis vor, jedoch liegt die Eintrittstemperatur unterhalb von 300°C (siehe 1 in Abb. 4.21).

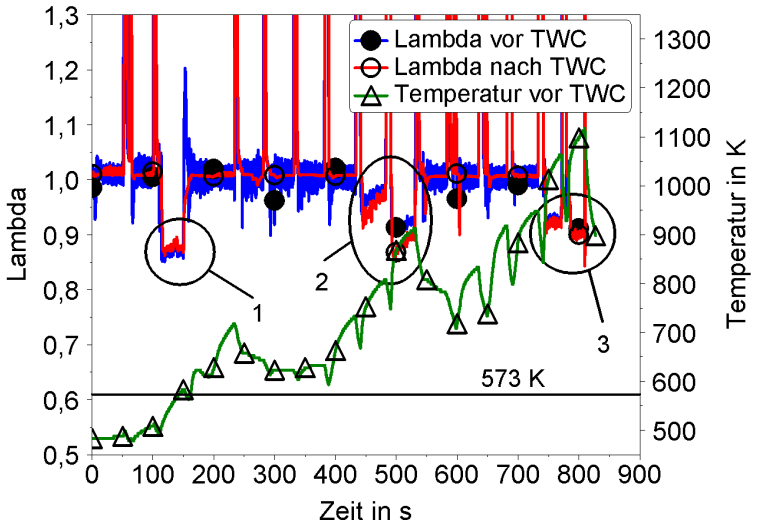
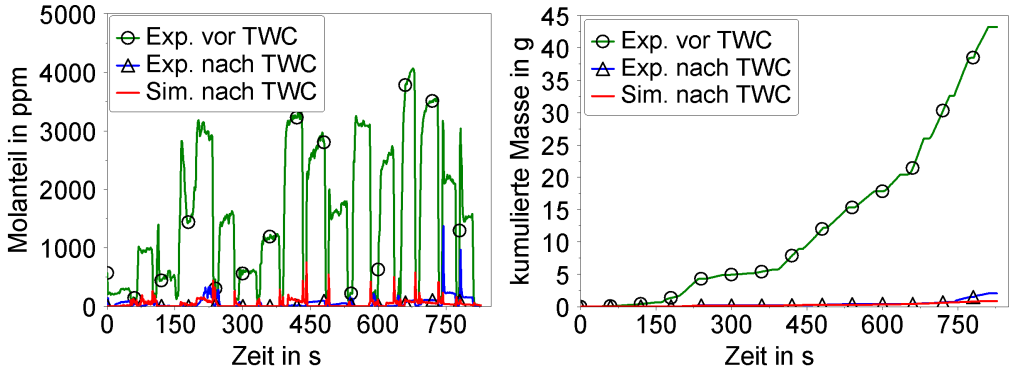


Abb. 4.21: *Lambdasignal aller Lastpunkte der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³*

Bei CO ist ebenfalls eine geringere Konversion bei der Simulation zu erkennen. Eine mögliche Beseitigung dieser Abweichung bietet die Implementierung der „Water-Gas-Shift"-Reaktion

$$CO + H_2O \rightharpoonup CO_2 + H_2 \ , \tag{4.10}$$

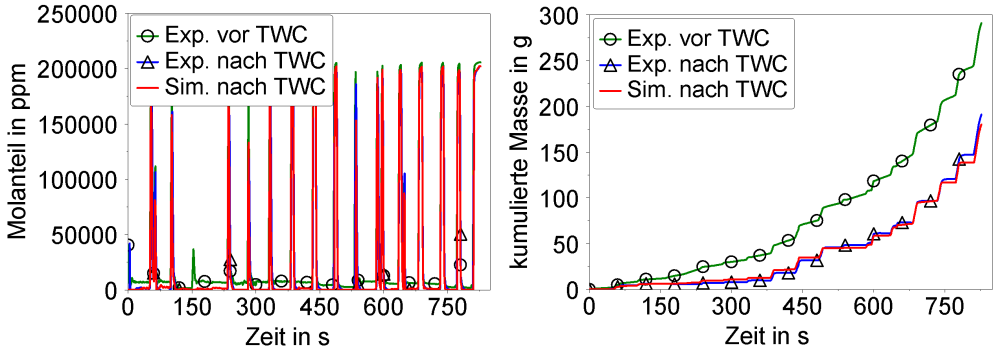
die durch die Edelmetalle Rhodium und Palladium im oxidierten Zustand katalysiert wird [18]. Durch den erhöhten Umsatz der CO könnte letztendlich auch die Abweichung beim NO – Bereich von 750 bis ca. 820 s – beseitigt werden (siehe Abb. 4.22), in dem die simulierte Konversion zu hoch. Ein erhöhter Umsatz von CO durch die „Water-Gas-Shift"-Reaktion führt zwangsläufig zu einem verminderten Umsatz von NO, da weniger CO zur Reduktion zur Verfügung steht [18].



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.22: *NO – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³ NEFZ-untypischer Lastpunkte*

Für die Simulation des Sauerstoffs ist die Güte für diesen Zyklus vergleichbar mit dem Zyklus mit vorwiegend NEFZ-typischen Lastpunkten.



(a) Molanteil (b) kumulierte Masse

Abb. 4.23: *O_2 – Molanteile und kumulierte Massen der Variante 350/5.5 - 80 g/ft³ NEFZ-untypischer Lastpunkte*

Letztendlich ist festzuhalten, dass für die Simulation des NEFZ Fälle hoher Last und somit eine starke Anfettung des Motors nicht vorkommen. Der Motor wird fast vollständig bei $\lambda = 1$ gefahren. Die beobachteten Abweichungen hingegen treten hauptsächlich im Wechsel von mageren ($\lambda > 1$) zu fetten ($\lambda < 1$) Betriebszuständen („Water-Gas-Shift"-Reaktion) bzw. bei fetten Betriebszuständen („Steam-Reforming"-Reaktion) auf. Die Wahl der Lastpunkte ist somit abhängig vom Anwendungsbereich der Simulation.

Eine Implementierung von „Steam-Reforming"- und „Water-Gas-Shift"-Reaktion würde die Anpassung der reaktionskinetischen Parameter unabhängig von der Wahl der Lastpunkte und somit vom Betriebspunkt machen. Die angepassten, reaktionskinetischen Parameter wären im gesamten Motorkennfeld gültig, was eine Simulation starker Lastwechsel und Anfettungen des Motors ermöglichen würde.

4.9 Diskussion der kinetischen Parameter

Zuletzt soll die Abhängigkeit der kinetischen Parameter von der gewählten Katalysatorvariante diskutiert werden. Betrachtet wird zum einen ein dem Umsatz proportionaler Faktor als Funktion des jeweiligen Katalysators. Zum anderen wird untersucht, inwiefern sich der Frequenzfaktor als Funktion von Edelmetallbeladung und spezifischer Oberfläche darstellen lässt.

Für die Betrachtung des Umsatzes einer Komponente j anhand eines Reaktionspfades k wird von Gl. 2.16 ausgegangen. Durch Einsetzen der Randbedingung (Gl. 2.15) kann der Stofftransportterm durch den heterogenen Reaktionsterm ersetzt werden:

$$c_{\mathrm{g}}\, w_z\, \frac{\partial \tilde{x}_{\mathrm{g},j,k}}{\partial z} = -\frac{a_{\mathrm{cat}}}{\epsilon_{\mathrm{cat}}}\, \dot{r}_{j,k}\ . \tag{4.11}$$

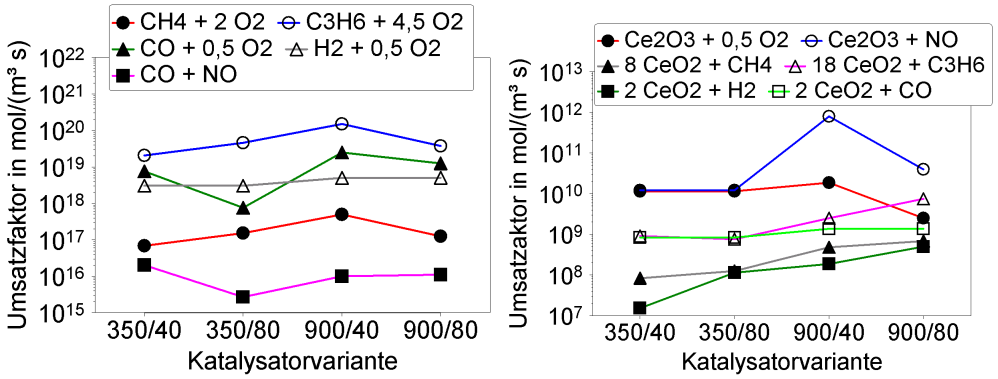
Mit Gl. 2.34 und Gl. 2.36 lässt sich Gl. 4.11 wie folgt darstellen:

$$c_{\mathrm{g}}\, w_z\, \frac{\partial \tilde{x}_{\mathrm{g},j,k}}{\partial z} = -\frac{a_{\mathrm{cat}}}{\epsilon_{\mathrm{cat}}}\, \nu_{j,k}\, k_{0,k}\, \exp\left(-\frac{E_{\mathrm{A},k}}{R\,T}\right) \prod_l \theta_l^{n_l}\ . \tag{4.12}$$

Durch eine Multiplikation von Gl. 4.12 mit Lückengrad und Querschnittsfläche des Katalysators und im Anschluss eine Integration über die Länge des Katalysators erhält man den Verbrauch einer Komponente, aus dem sich wiederum der Umsatz bestimmen lässt. Hieraus ergibt sich ein für den Umsatz repräsentativer Faktor $\hat{k}_{0,j}(cat)$, der aus angepasstem Frequenzfaktor und der Oberfläche aller Kanalwände besteht. Da alle hier verwendeten Katalysatoren das gleiche Volumen besitzen, kann anstelle der Oberfläche aller Kanalwände die spezifische Oberfläche verwendet werden:

$$\hat{k}_{0,k}(cat) = a_{\mathrm{cat}}\, k_{0,k}\ . \tag{4.13}$$

Abbildung 4.24 zeigt die für den Umsatz repräsentativen Frequenzfaktoren $\hat{k}_{0,j}(cat)$ der Reaktionen 1 bis 5 bzw. der Sauerstoffspeicherreaktionen 6 bis 11 (siehe Abschn. 2.3.1) für die vier betrachteten Katalysatorvarianten. Zusätzlich zum grafischen Vergleich sind in Anhang A.5 Zahlenwerte für den Vergleich der verschiedenen Varianten dargestellt.



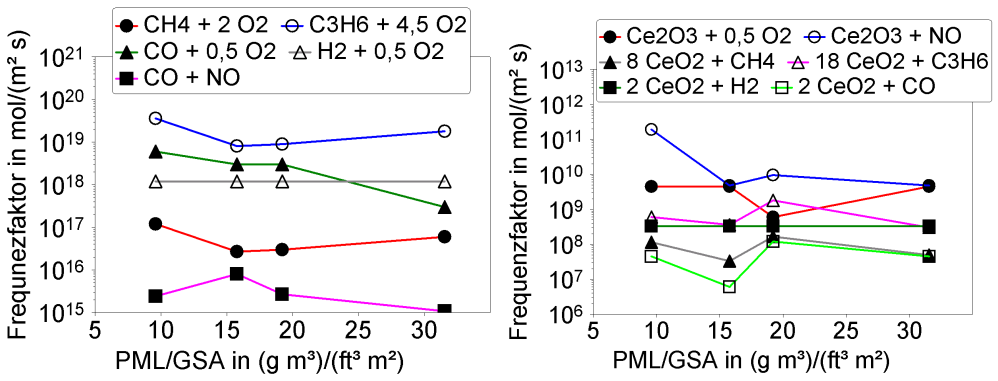
(a) Reaktionen 1-5 (b) Reaktionen 6-11

Abb. 4.24: *Abhängigkeit der Reaktionskinetik von der Katalysatorvariante*

Betrachtet man zunächst den Einfluss der Edelmetallbeladung auf die Frequenzfaktoren $\hat{k}_{0,j}(cat)$ aller Reaktionen, so steigen bzw. sinken diese mit steigender Edelmetallbeladung, abhängig von der Katalysatorvariante (350/5.5 oder 900/2) und der jeweiligen Reaktion. Eine eindeutige Tendenz lässt sich nicht erkennen. Untersucht man den Einfluss der spezifischen Oberfläche, so kann meist ein leichter Anstieg des Umsatzes mit steigender spezifischer Oberfläche festgestellt werden. Trotz gleicher Edelmetallbeladung und somit „gleicher“ Anzahl an Edelmetallplätzen und gleichem Typ des Washcoats steigt der Frequenzfaktor $\hat{k}_{0,j}(cat)$ im Allgemeinen von der Variante 350/5.5 zur Variante 900/2. Gründe für den erhöhten Umsatz können die mit

der Zelldichte und somit dem Lückengrad steigende Verweilzeit, der mit steigender Zelldichte und damit sinkendem hydraulischem Durchmesser erhöhte Stoffübergang in den Kanälen, oder möglicherweise auch eine bessere Dispersion der Edelmetalle mit steigender spezifischer Oberfläche sein. Inwiefern die Dispersion der Edelmetalle eine Rolle spielt wird im Folgenden geklärt.

Es wird angenommen, dass der Frequenzfaktor nicht von der absoluten Edelmetallbeladung abhängt, sondern von dem Verhältnis aus Edelmetallbeladung und spezifischer Oberfläche (PML-Dichte, siehe Anhang A.4 Tab. A.6). Die Wahrscheinlichkeit, dass eine der Komponenten des Abgases auf der Oberfläche reagiert, sollte mit steigender PML-Dichte (steigendes PML/GSA-Verhältnis) ansteigen. Abbildung 4.25 zeigt den reinen Frequenzfaktor aus Gl. 4.13 aufgetragen über dem Verhältnis aus Edelmetallbeladung und spezifischer Oberfläche (PML/GSA).



(a) Reaktionen 1-5 (b) Reaktionen 6-11

Abb. 4.25: *Abhängigkeit der Reaktionskinetik von PML/GSA*

Eine eindeutige Regelmäßigkeit ist auch hier nicht zu erkennen. Erwartet wurde ein Anstieg der Frequenzfaktoren mit steigender PML-Dichte. Stattdessen fallen die Werte für fast alle Reaktionen zunächst und steigen dann nur bei einigen leicht an. Ein Grund für diesen Widerspruch zur theoretischen Überlegung könnte die Edelmetall-Sinterung sein, da anzunehmen ist, dass eine steigende spezifische Oberfläche eine bessere Dispersion der Edelmetalle ermöglicht.

Die vorangegangene Diskussion hat gezeigt, wie schwierig es ist, Aussagen über die Skalierung der kinetischen Parameter zu machen. Eindeutige Tendenzen konnten nicht aufgezeigt werden, so dass zum jetzigen Zeitpunkt auf eine Parameteranpassung nicht verzichtet werden kann. Inwiefern eine hinreichend gute Aussage über das Verhalten der kinetischen Parameter in Abhängigkeit von Geometrie und Edelmetallbeladung möglich ist, könnte mit einer auf verschiedenen Katalysatoren beruhenden Datenbasis geprüft werden. Es müssten Edelmetallbeladungen, Washcoats, das Verhältnis der Edelmetalle (Pt:Rh:Pd) und die Geometrie (CPSI, GSA, OFA)

variiert werden. Dieses bedarf jedoch eines hohen finanziellen und zeitlichen Aufwandes. Ferner sollte für solch eine Untersuchung eine Strategie zur Bewertung der Güte in Verbindung mit einem automatisierten Verfahren zur Parameteranpassung entwickelt werden, um die subjektive und zeitintensive manuelle Parameteranpassung vermeiden zu können.

4.10 Fazit

Anhand der Rechnungs-/Messungsvergleiche konnte gezeigt werden, dass durch eine Anpassung der Parameter an NEFZ-typische Lastpunkte eine gute Vorraussage der Beutelergebnisse des NEFZ erzielt werden kann. Alle vier Katalysatorvarianten zeigen ähnlich gute Ergebnisse (siehe Anhang A.6). Aufgrund der Tatsache, dass die Katalysatorvariante 350/5.5 mit 40 g/ft^3 Edelmetallbeladung zweimal vorhanden ist, konnte auch die Reproduzierbarkeit getestet werden. Angepasst wurden die Parameter für einen der beiden Katalysatoren, mit denen dann der NEFZ für beide gerechnet wurde. Die Ergebnisse beider Simulationen weisen dabei nur geringe Unterschiede auf (siehe auch Anhang A.6).

Die Simulation NEFZ-untypischer Lastpunkte hingegen hat gezeigt, dass die verwendeten Modelle in diesem Bereich nicht ausreichen, um eine gute Wiedergabe der Molanteile zu gewährleisten. Bei der Simulation des FTP-75 bzw. des SFTP-US06 (aggressive Fahrweise, hohe Last), beides amerikanische Zertifizierungszyklen, könnte dieses bereits zu Problemen führen. Im Gegensatz zum NEFZ sind beim FTP-75 die Anteile an Gleichfahrt und Leerlauf geringer und die Anteile an Beschleunigung und Verzögerung dementsprechend höher. Der FTP-75 ist dynamischer und entspricht eher einem realen Fahrverhalten. Ferner deckt dieser einen viel größeren Bereich des Motorkennfeldes ab als der NEFZ [58]. Demzufolge sollten weitere Modelle, wie z. B. die „Water-Gas-Shift“- bzw. „Steam-Reforming“-Reaktion, implementiert werden.

Die Frage bezüglich einer Abhängigkeit der kinetischen Parameter von der Edelmetallbeladung bzw. des Washcoats kann zu diesem Zeitpunkt nicht geklärt werden. Für eine konkrete, fundierte Aussage müssten eine große Anzahl an Katalysatoren verschiedener Washcoats und Edelmetallbeladungen vermessen werden und eine umfangreichere Untersuchung der verschiedenen Einflussparameter erfolgen.

Kapitel 5

Validierung des Dieselpartikelfilters

Im Rahmen dieser Arbeit werden relevante Effekte wie Aufheizverhalten, Rußabbrand und Druckverlust für den unbeschichteten Dieselpartikelfilter inklusive einiger Modellerweiterungen untersucht. Der beschichtete Filter hingegen wird nicht betrachtet, da eine Beschichtung vor allem dafür sorgt, dass das bei der Regeneration entstehende CO bzw. das durch die Nacheinspritzung entstandene THC umgesetzt wird. Es erfolgt zwar auch eine Herabsetzung der Aktivierungsenergie, was sich durch eine Hysterese des Druckverlusts im Beladungsdiagramm bemerkbar macht, jedoch nur in Wandnähe und innerhalb der Poren aufgrund des guten Kontakts zwischen Edelmetall und Ruß. Zum grundlegenden Verständnis der Funktionsweise eines Partikelfilters ist es vorteilhaft, zunächst einen unbeschichteten Filter zu betrachten. Die folgenden Ergebnisse für den unbeschichteten DPF wurden alle anhand von 1D-Simulationen erzielt. Zeitintensive 2D-Simulationen, deren Verwendung explizit erwähnt werden wird, wurden nur zur Untersuchung 2-dimensionaler Effekte durchgeführt.

5.1 Versuchsaufbau

Die Versuche zur DPF-Validierung wurden auf einem Motorprüfstand der IAV GmbH in Gifhorn durchgeführt. Für die Versuche wurde ein 2,5 l Turbodiesel-Direkteinspritzmotor mit Euro 4 Applikation für den Einsatz in leichten Nutzfahrzeugen verwendet. Der für diese Arbeit relevante Teil der Versuche wurde mit einem unbeschichteten SiC-Filter 200/15, d. h. mit einer Zelldichte von 200 CPSI (170 CPSI gemessen – Vorgabe in den Simulationen), einer Wandstärke von 15 mil ($3{,}81 \cdot 10^{-4}$ m) und mit einer Porosität von 46 %, durchgeführt. Die Länge des Filters beträgt 6” (0,1524 m) bei einem Durchmesser von 5,66” (0,1438 m).

Abbildung 5.1 zeigt den Aufbau am Motorprüfstand. Um die Abgaszusammensetzung vor und nach DPF kontinuierlich messen zu können, wurde am Motorprüfstand

eine Versuchsanordnung mit insgesamt drei Abgasanalysensystemen realisiert. Zwei der Abgasanalysensysteme (MEXA 1 und MEXA 2) wurden zur Messung aller relevanten Größen wie CO, CO_2, THC, NO_x und O_2 verwendet. Darüber hinaus wurde ein Chemiluminiszenzanalysator (CLD) verwendet, der bei den NO_x zwischen NO, NO_2 und N_2O unterscheidet. Mit der Annahme, dass das gesamte NO_2 mit dem Ruß reagiert – ohne erneute Aufoxidation von NO zu NO_2 wie beim CSF – reicht ein CLD vor dem DPF aus. Mit diesem Messaufbau können somit Untersuchungen zur Selektivität bezüglich CO und CO_2 und der CRT®-Effekt, d. h. der Abbrand von Ruß mit NO_2, näher untersucht werden.

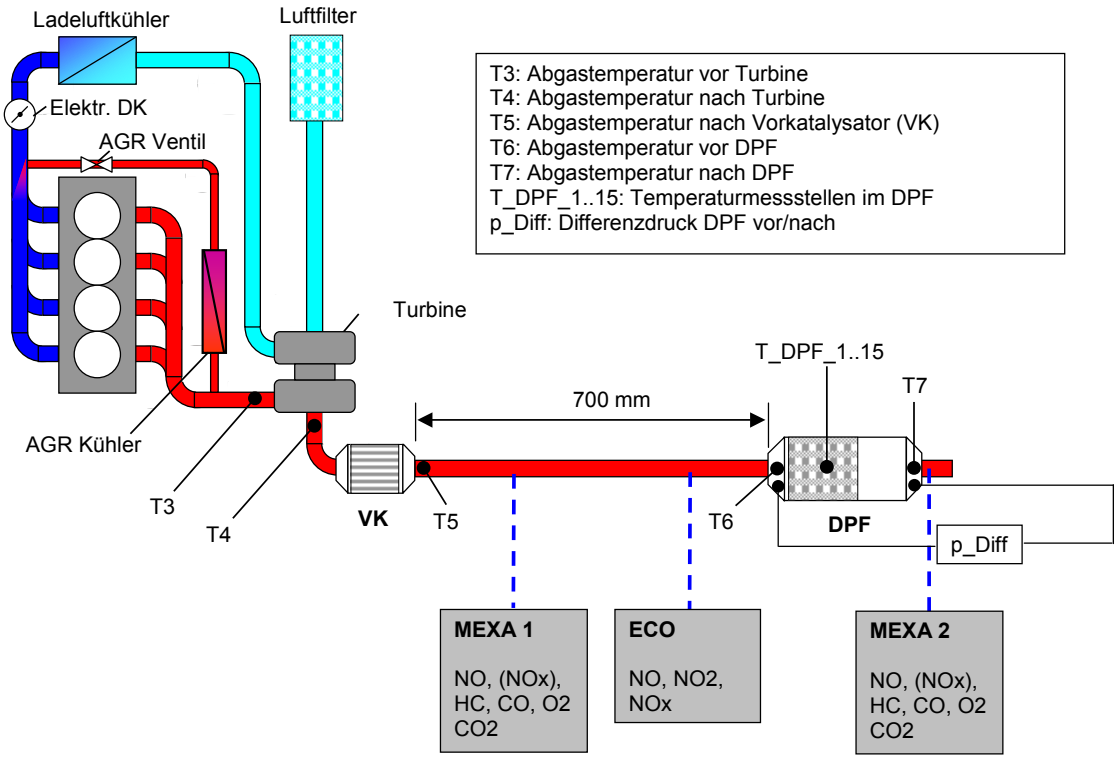


Abb. 5.1: *Versuchsaufbau der DPF-Validierung*

Um detailliert Temperaturen im DPF zu messen, wurden 0,5 mm durchmessende Thermoelemente an verschiedenen radialen und axialen Stellen positioniert. Abbildung 5.2 zeigt die radiale Thermoelementverteilung an den vier axialen Messstellen. Der Versuchsaufbau ist so gewählt worden, dass eine möglichst gleichmäßige Anströmung gegeben ist. Folglich kann näherungsweise von einer Rotationssymmetrie ausgegangen werden, bei der die Segmente einer Ebene repräsentativ für die anderen Segmente sind. Wegen der für SiC-Filter typischen segmentierten Bauweise muss ein zusätzliches Thermoelement verwendet werden (z. B. TIR 4 in Ebene M1). Axial wird an vier Messstellen des Filters gemessen; 10 mm (M1), 50 mm (M2), 90 mm (M3) und 130 mm (M4) nach Filtereintritt. Im Gegensatz zur axialen Lage der Thermoelemente bei den TWC-Versuchen (siehe Abschn. 4.2) sind hier auch im hinteren

Bereich des Filters Thermoelemente angeordnet. Als Grund ist das unterschiedliche Zündverhalten beider Konvertertypen zu nennen. Während beim TWC das gesamte Oxidationsmittel bereits im vorderen Bereich aufgebraucht wird, ist beim DPF der Molanteil des Oxidationsmittels entlang des Kanals konstant. Bereits geringe Umsätze des Rußes führen zu einem Aufheizen der Strömung in axialer Richtung, das zu einer erhöhten Enthalpie des Gases am Ende des Kanals führt. Der Partikelfilter kann somit auch vom hinteren Teil des Filters nach vorne durchzünden, was mit Hilfe der angepassten Thermoelementverteilung detektiert werden kann.

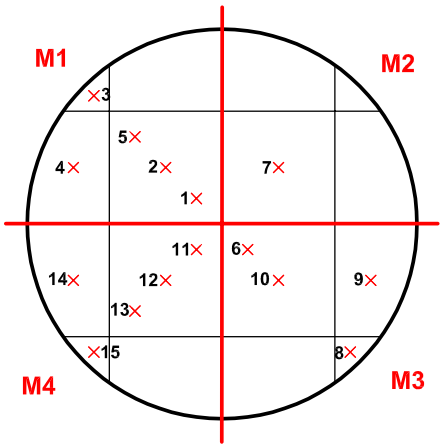


Abb. 5.2: *Thermoelementverteilung – radialer Querschnitt durch den Filter*

Die Thermoelemente werden vom hinteren Ende des Filters durch die Kanäle an die gewünschte axiale Position gesteckt. Um eine Verschiebung der Thermoelemente zu verhindern, wird ein Adapter mit Schraubbuchsen zur Befestigung der Thermoelemente benutzt. In der folgenden Abbildung sind Fotos des Adapters und des Filters mit den von hinten hineingeschobenen Thermoelementen zu sehen.

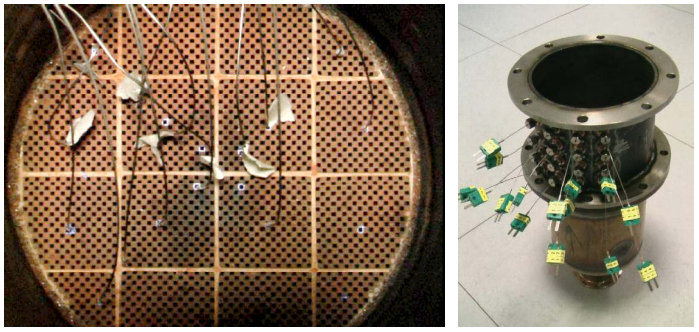


Abb. 5.3: *Fotos der Versuchsanlage*

Um einen leichten Ein- und Ausbau der Filter zum Wiegen der Rußmasse zu gewährleisten, wurde das Gehäuse an beiden Enden mit Schnellverschlüssen versehen. Ferner ist ein schneller Wechsel notwendig, um ein Auskondensieren von Wasser (siehe Abschn. 5.2) zu verhindern, welches die gewogene Rußmasse verfälschen würde.

5.2 Versuchsdurchführung

Zur Beladung des Filters sind verschiedene Motorkennfeldpunkte des NEFZ verwendet worden. Hierbei wurde jeder Kennfeldpunkt ca. eine halbe Stunde konstant gefahren. Dieser generische Zyklus wurde so lange wiederholt, bis die gewünschte Beladung erreicht war. Diese Verfahrensweise sollte gewährleisten, dass bei der Beladung des Filters zum einen eine axial und radial homogene Rußschicht entsteht, zum anderen aber auch reproduzierbare Rußeigenschaften bei allen Versuchen. Nach der Filterbeladung folgt die Regeneration in einem bestimmten Motorbetriebspunkt. Regeneriert wurde der Filter durch ein aktives Eingreifen der Motorsteuerung. Die benötigten Temperaturen von 500°C bis 600°C [38,50] wurden mit Hilfe einer Nacheinspritzung in Verbindung mit einer Drosselung des Motors realisiert. Die Drosselung der Ansaugluft bewirkt dabei eine Erhöhung der Abgastemperatur im Motor [58]. Die Nacheinspritzung hingegen kann, abhängig vom Einspritzbeginn, sowohl zu einer internen Abgastemperaturerhöhung im Motor genutzt werden, als auch durch den entstehenden Überschuss an unverbrannten THC – Kraftstoffanreicherung des Abgases – zu einer katalytischen Nachverbrennung im vorgeschalteten DOC. Regeneriert wurde in verschiedenen Motorbetriebspunkten, um auf diese Weise unterschiedliche Regenerationsbedingungen – eine Variation von Massenstrom und O_2 – zu erzielen. Tabelle 5.1 zeigt die durchgeführten neun Regenerationsversuche.

Tab. 5.1: *Kennfeldpunkte der Regeneration*

Experiment	Drehzahl 1/min	Drehmoment Nm	Rußbeladung g/l
1	1500	56	3,0
2	1500	56	6,0
3	1200	80	3,0
4	1200	80	6,0
5	1500	56	3,0
6	1500	145	6,0
7	1500	145	3,0
8	1250	38	6,0
9	1500	145	6,0

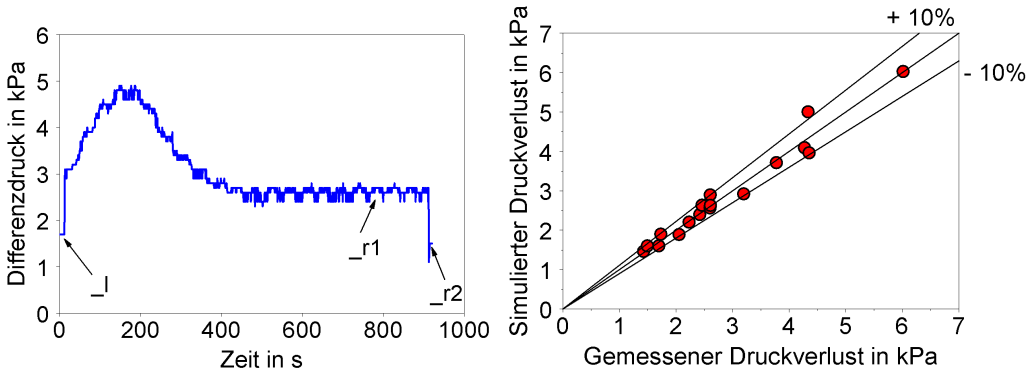
Zur Bestimmung der regenerierten Rußmasse wurden die Filter vor der Beladung und vor und nach der Regeneration gewogen. Die Wägung wurde bei einer Temperatur oberhalb von 403 K durchgeführt, um eine Kondensation von Wasser und somit eine Verfälschung der Messergebnisse der Rußbeladung zu verhindern. Für die weiteren Auswertungen und Diskussionen werden fünf der neun Messungen – Messung 2 bis 5 und Messung 9 – aus Tab. 5.1 verwendet.

5.3 Anpassung der Druckverlustparameter

Als erstes werden die Druckverlustparameter $\alpha_{w,j}$ und $\beta_{w,j}$ der Darcy- und der Forchheimer-Gleichung (Gln. 3.55 und 3.56) für den Ruß und die Filterwand anhand von stationären Daten angepasst. Für diese Parameteranpassung werden Druckverluste für beladene und leere (regenerierte) Filter benötigt. Innerhalb eines Regenerationsversuchs können die folgenden drei Bereiche (siehe auch Abb. 5.4a) identifiziert werden, bei denen Temperatur, Druck und Massenstrom annähernd stationär sind und sowohl ein beladener wie auch regenerierter Filter berücksichtigt wird:

1. beladener Filter beim Massenstrom vor der Regeneration (_l)
   – Massenstrom vor der Regeneration ≅ Massenstrom nach der Regeneration,
2. regenerierter Filter bei Regenerationsmassenstrom (_r1)
   – Regenerationsmassenstrom > Massenstrom vor der Regeneration,
3. regenerierter Filter beim Massenstrom nach der Regeneration (_r2).

Abbildung 5.4b zeigt einen Vergleich zwischen simulierten und gemessenen Druckverlusten nach Anpassung der Parameter für das 1-Komponenten-Modell. Die Anpassung der Parameter erfolgte anhand der Minimierung der relativen Fehler im gesamten Bereich der verwendeten stationären Punkte. Als Ergebnis folgt ein maximaler relativer Fehler von ungefähr 10 %.



(a) Bereiche (b) Abweichungen

Abb. 5.4: *Anpassung der Druckverlustparameter*

Zu beachten ist, dass die Anpassung der Druckverlustparameter für den Ruß abhängig von der gewählten Rußdichte ist, da diese die Dicke des Filterkuchens beeinflusst. Bei der Wahl eines neuen Wertes für die Rußdichte (Abschn. 3.1.2 zeigt die große Bandbreite an Werten der in der Literatur verwendeten Rußdichten) müssen auch die Druckverlustparameter erneut angepasst werden. Eine Möglichkeit, das zu vermeiden, ist die Verwendung eines Produkts aus Rußdichte und Druckverlustparameter [66].

5.4 Bilanzierung des Rußes

Zur Anpassung der chemischen Teilmodelle wird eine Rußbilanz durchgeführt, wobei Ruß als reiner Kohlenstoff betrachtet wird. Über eine Bilanz der C-Atome an Ein- und Austritt lässt sich folglich der verbrannte Ruß näherungsweise bestimmen:

$$\Delta \mathrm{C} = \Delta \mathrm{CO_2} + \Delta \mathrm{CO} \ . \tag{5.1}$$

Eine Rückwärtsintegration der Differenzen ergibt dann den zeitabhängigen Rußverlauf

$$\Delta \mathrm{C} = \int_t^{t_0} \frac{\tilde{M}_\mathrm{C}}{\tilde{M}_\mathrm{Exh}} \dot{M}_\mathrm{Exh} \left(\tilde{x}_{\mathrm{CO_2,out}} - \tilde{x}_{\mathrm{CO_2,in}}\right) \mathrm{d}t + \int_t^{t_0} \frac{\tilde{M}_\mathrm{C}}{\tilde{M}_\mathrm{Exh}} \dot{M}_\mathrm{Exh} \left(\tilde{x}_{\mathrm{CO,out}} - \tilde{x}_{\mathrm{CO,in}}\right) \mathrm{d}t \ . \tag{5.2}$$

Bei dieser Rußbilanz wird eine Differenz der THC nicht mitberücksichtigt. Hierzu können zwei Gründe genannt werden. Zum einen ist die Differenz an THC im Vergleich zu der Differenz an CO und CO_2 vernachlässigbar. Zum anderen ist die Differenz der THC im Bereich der Regeneration und danach konstant. Aufgrund von Eigenschaften der Abgasanalyse kann davon ausgegangen werden, dass die gemessenen THC aus der Nacheinspritzung stammen und nicht zu den SOF, dem flüchtigen Bestandteil der Partikelmasse, gezählt werden können. SOF bestehen aus schweren Kohlenwasserstoffen, die bei niedrigen Temperaturen leicht auskondensieren. Da die Leitungen der Abgasentnahme nur auf ca. 190°C geheizt wurden, was ein Auskondensieren der SOF ermöglicht, konnten diese von der Abgasanalyse nicht gemessen werden.

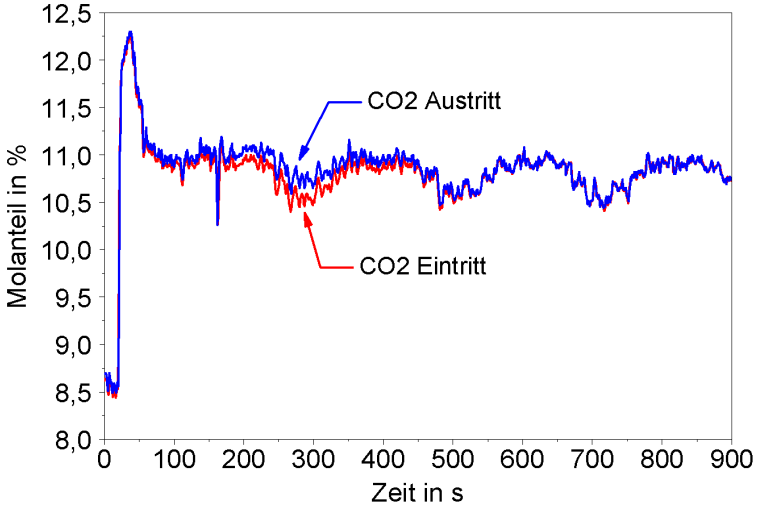


Abb. 5.5: *CO_2-Verlauf der Kalibrierungsmessung*

Eine Datenaufbereitung, bei der die CO_2-Verläufe so verschoben werden, dass nach der Regeneration der Eintritts- und Austrittsmolanteil übereinander liegen (siehe

Abb. 5.5), ist somit gerechtfertig. Außer der Anpassung der Molanteilverläufe werden auch die zeitlichen Verschiebungen behoben, so dass z. B. die Flanken des Anstieges in Abb. 5.5 bei ca. 25 s aufeinander liegen.

Eine andere Art der Betrachtung ist die Bilanzierung der O-Atome:

$$2\,\Delta CO_2 + \Delta CO + 2\,\Delta O_2 = 0\ . \tag{5.3}$$

Sowohl NO als auch NO_2 werden in Gl. 5.3 nicht berücksichtigt, was durch den geringen Anteil an NO_2 motiviert ist. Die Auswertung der Messungen hat gezeigt, dass während der eigentlichen Regeneration kein NO_2 am Filtereintritt vorhanden ist. Lediglich in den ersten 50 s, der Aufheizphase des Filters, ist ein geringer Molanteil von 20 bis 50 ppm vorhanden. Mit Gl. 5.1 und einer Rückwärtsintegration über die Zeit (siehe Gl. 5.2) kann die zeitabhängige Rußbeladung der Bilanz der O-Atome bestimmt werden:

$$2\ (\Delta C - \Delta CO) + \Delta CO + 2\,\Delta O_2 = 0\ , \tag{5.4}$$

$$\Rightarrow \Delta C = -\Delta O_2 + 0,5\,\Delta CO\ . \tag{5.5}$$

Die folgende Abbildung zeigt einen Vergleich der beiden Bilanzen und die Beiträge der Reaktionsprodukte CO und CO_2 zur Rußbilanz.

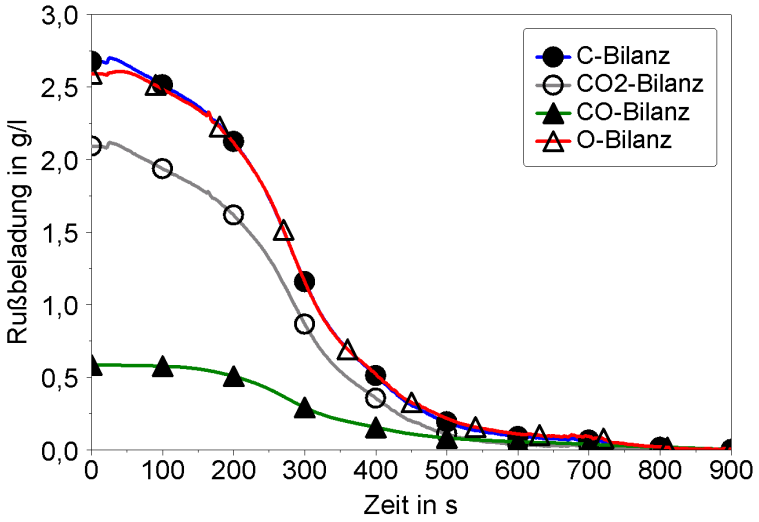


Abb. 5.6: *Vergleich der Rußbilanzen der Kalibrierung*

Es ist deutlich zu erkennen, dass beide Arten der Bilanzierung trotz unterschiedlicher dominierender Molanteildifferenzen (CO_2 und O_2) sehr gut übereinstimmen. Um jedoch eine Aussage über die Güte dieser Methode machen zu können, werden die gewogenen mit den über die C-Bilanz bestimmten, maximalen Rußbeladungen für die Messungen 2 bis 5 und die Messung 9 (siehe Abschn. 5.2) verglichen.

Tab. 5.2: *Vergleich der Rußbeladung durch Wägung und Bilanzierung der C-Atome*

Experiment	Wägung g/l	C-Bilanz g/l	Relativer Fehler %
2	4,60	2,91	36,74
3	2,74	2,68	2,36
4	5,78	4,79	17,17
5	3,78	3,28	13,13
9	5,71	4,16	27,16

Tabelle 5.2 zeigt für einige Versuche eine recht große Diskrepanz zwischen Messung und C-Bilanz. Ein Grund für die Abweichungen könnte die vereinfachte Modellvorstellung sein, dass Ruß lediglich aus Kohlenstoff besteht. Abhängig vom Motorbetriebspunkt kann Ruß allerdings bis zu 60 % SOF enthalten [70], die ab einer Temperatur von 300°C bis 400°C oxidieren. Während durch eine Oxidation die SOF in die Rußbilanz miteingehen, beeinflussen nicht oxidierte, verdampfte SOF zwar die gewogene Rußmasse, werden von der Abgasanalyse jedoch nicht erfasst.

Weitere Möglichkeiten für die Abweichung zwischen Rußbilanz und -wägung könnten Messungenauigkeiten der Messinstrumente – Waage und Abgasanalyse – wie auch Fehler beim Messvorgang – z. B. beim Wiegen – sein. Bezüglich des Wiegens wurde zwar versucht, den Filter immer bei einer Temperatur oberhalb von 403 K zu wiegen, jedoch kann ein Schwanken der Temperatur, was zu einer Auskondensation von Wasser führen kann, nicht ausgeschlossen werden. Die Berücksichtigung sämtlicher Messfehler der Waage – Standardabweichung und maximale Linearitätsabweichung – führt zu einer maximalen, absoluten Abweichung von ± 0,14 g/l, die eine absolute Veränderung des relativen Fehlers beider Bilanzen von ± 1,5 - 5 % zur Folge hat.

Abschließend soll der Einfluss von Messfehlern der Abgasanalyse auf die CO_2-Differenzen, die das Hauptprodukt des Rußabbrands sind, geprüft werden. Die Untersuchung dieser Messfehler verringert sich aufgrund der Datenbehandlung, bei der Ein- und Austrittsmolanteile des CO_2 verschoben werden, zu einer Untersuchung der Standardabweichung

$$\overline{\sigma} = \frac{\sum_{i=1}^{N} |\Delta \tilde{x}_i|}{N} \; ; \tag{5.6}$$

Gaslaufzeiten oder Querempfindlichkeiten müssen somit z. B. nicht mehr betrachtet werden.

Im Bereich nach der Regeneration (siehe Abb. 5.5, Bereich von 600 bis 900 s) kann wegen der Datenverschiebung lediglich ein Messrauschen bzw. eine Phasenverschiebung zu einer Abweichung führen. Die Standardabweichung des Bereichs der Regeneration (siehe Abb. 5.5, Bereich von ca. 110 bis 530 s) gibt vor allem den Rußabbrand

wieder. Für den Bereich vor der Regeneration (siehe Abb. 5.5, Bereich von ca. 80 bis 110 s), d. h. der Aufheizphase, wird ebenfalls angenommen, dass im Idealfall keine Differenz bei den CO_2-Signalen auftritt. Es müsste sich eine zu der nach der Regeneration vergleichbare Standardabweichung ergeben. Bezieht man die berechneten Standardabweichungen der Bereiche vor und nach der Regeneration auf die Standarabweichung im Bereich der Regeneration, so ergibt sich eine maximal mögliche Streuung

$$e_j = \frac{\overline{\sigma}_j}{\overline{\sigma}_{\mathrm{reg}}} \tag{5.7}$$

der Daten während der Regeneration. Tabelle 5.3 zeigt die Standardabweichungen der Bereiche und die dazugehörige Steuung für die Messungen 3, 4 und 5.

Tab. 5.3: *Fehlerabschätzung für CO_2*

Experiment	$\overline{\sigma}_1$	$\overline{\sigma}_{\mathrm{reg}}$	$\overline{\sigma}_2$	$e_{1,\mathrm{reg}}$	$e_{2,\mathrm{reg}}$
-	Vol-%	Vol-%	Vol-%	%	%
3	0,03	0,111	0,018	26,9	16
4	0,047	0,187	0,013	25,3	6,8
5	0,029	0,109	0,008	26,7	7,2

Vergleich man die Streuung $e_{1,\mathrm{reg}}$, bei der die Standardabweichung des Bereichs vor der Regeneration als Bezug gilt, mit der Streuung $e_{2,\mathrm{reg}}$, mit dem Bereich nach der Regeneration als Bezug, deutet dieses auf eine mögliche Oxidation von SOF im erstgenannten Bereich hin (siehe vergleichend auch Abb. 5.5). Aus diesem Grunde sollte der Wert von ca. 25 % nicht als reiner Messfehler interpretiert werden. Die Werte der Streuung $e_{2,\mathrm{reg}}$ von ca. 7 % für Messung 4 und 5 und von ca. 16 % für Messung 3 hingegen scheinen als Messfehler plausibel zu sein, da in dem Referenzbereich (Standardabweichung $\overline{\sigma}_2$) der DPF schon vollständig regeneriert ist und Effekte wie die Oxidation von SOF nicht auftreten können.

Zusammenfassend ist zu sagen, dass die Diskussion lediglich aufzeigen konnte, an welcher Stelle Fehler entstehen können. Was die Hauptursache für die teilweise großen Abweichungen ist – nicht detektiertes SOF, Messfehler der Waage oder der Abgasanalyse, Temperaturschwankungen beim Wiegen – konnte nicht geklärt werden. Die Fehleranalyse hat jedoch gezeigt, das die auftretenden Abweichungen in der Größenordnung der Summe aller möglichen Fehler liegt.

5.5 Anpassung der reaktionskinetischen Parameter

Die im Rahmen der Versuchsreihe beladenen Partikelfilter werden aktiv durch Eingriffe der Motorsteuerung regeneriert (Erklärung in Abschn. 5.2). Der Rußabbrand kann dabei durch eine Regeneration mit O_2 bzw. NO_2 erfolgen. Die Betrachtung der vornehmlich passiven Regeneration durch NO_2 ist in dieser Arbeit jedoch nicht erforderlich, da der Anteil an NO_2 verschwindend gering ist und somit vernachlässigt werden kann (siehe Abschn. 5.4).

Im Gegensatz zu Autoren, die kinetische Parametersätze verwenden, die anhand fundamentaler Analysen von Ruß im Labor ermittelt wurden [36], werden im Rahmen dieser Arbeit die reaktionskinetischen Parameter der chemischen Teilmodelle durch Messdaten angepasst. Die Anpassung dieser Parameter ist motiviert durch die Untersuchungen von Su et al. [79] und Vander Wal und Tomasek [80]. Su et al. [79] fanden heraus, dass der Rußabbrand im Filter abhängig von der Art des verwendeten Motors ist. Dabei untersuchten sie den Unterschied zwischen Ruß erzeugt durch einen EURO IV HDD (**H**eavy **D**uty **D**iesel – Diesel-Lkw) und durch einen EURO III HDD Motor. Nicht nur die erzeugte Gesamtmasse an Ruß nimmt für den EURO IV HDD Motor um ca. 80 % ab, sondern auch die Beschaffenheit des Rußes verändert sich. Vander Wal und Tomasek [80] untersuchten sich in Abhängigkeit der Rußsynthese ändernde reaktionskinetische Eigenschaften und stellten fest, dass eine Veränderung der Morphologie zu einem veränderten Rußabbrand und somit veränderten Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien führt. Wie bei der in Abschn. 5.3 beschriebenen Anpassung der Druckverlustparameter geht auch bei der Anpassung der reaktionskinetischen Parameter die Rußdichte als sensitive Größe in das System ein. Eine Änderung sowohl der Rußdichte und somit der Rußdicke als auch der Rußeigenschaften hat folglich eine erneute Parameteranpassung zur Folge.

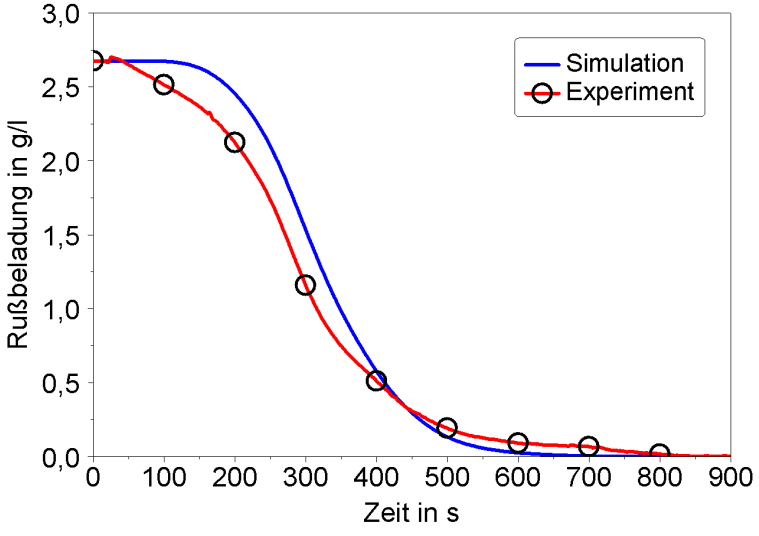


Abb. 5.7: *Rußverlauf der Kalibrierung während der Regeneration*

Zur Anpassung der Parameter an Messungen, im Folgenden auch Kalibrierung genannt, wird Versuch 3 verwendet, da hier die Abweichung zwischen bilanziertem und gemessenem Rußverlauf am geringsten ist. Im Rahmen der Anpassung wird darauf geachtet, dass die Rußverläufe (siehe Abb. 5.7) annähernd parallel zueinander verlaufen. Bei zu niedrigen Aktivierungsenergien bzw. auch zu hohen Frequenzfaktoren würde die Kurve zu steil, bei zu hohen bzw. zu niedrigen zu flach verlaufen. Die in Abb. 5.7 dargestellten Ergebnisse zeigen eine recht gute Übereinstimmung. Die Kurven verlaufen parallel zueinander, es ist jedoch ein zeitlicher Verzug zwischen Simulation und Messung vorhanden, der sich durch eine Anpassung der reaktionskinetischen Parameter nicht beheben lässt.

Im Anschluss an die robuste Kalibrierung des Gesamtumsatzes an Ruß erfolgt eine Feinabstimmung der Parameter der vollständigen und der unvollständigen Reaktion, um auch die Selektivität bezüglich CO (unvollständige Oxidation) richtig beschreiben zu können. Im Gegensatz zu Koltsakis et al. [38,67], die für die Selektivität einen konstanten Faktor verwenden, wird für die Oxidation von Ruß zu CO eine separate Reaktionskinetik benutzt. Ein weiterer Ansatz, der ebenfalls eine temperaturabhängige Selektivität berücksichtigt, wird von Konstandopoulos et al. verwendet [40]. Im Unterschied zu dem hier verwendeten Modell geht die Temperaturabhängigkeit nicht über eine gesonderte Reaktionsgleichung für die unvollständige Reaktion ein, sondern über zusätzliche Selektivitätsfaktoren, die, genau wie der Arrhenius-Ansatz, ein exponentielles Verhalten besitzen.

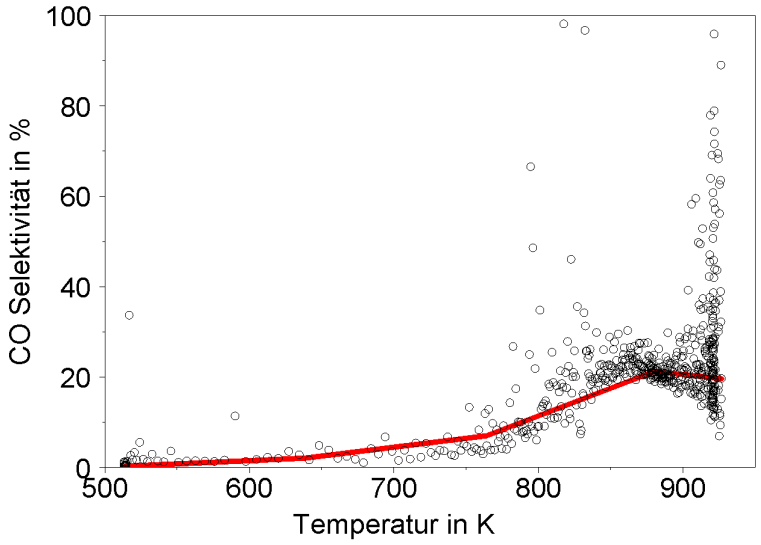


Abb. 5.8: *Selektivität bezüglich CO*

Abbildung 5.8 zeigt die gemessene Selektivität bezüglich CO für Versuch 3. Es ist deutlich eine Temperaturabhängigkeit dieser zu erkennen, die mit steigender Temperatur bis zu einer maximalen Selektvität von ca. 25 % anwächst. Dieses Verhalten

der Selektivität bezüglich CO wurde bereits von Ahlström et al. [81] für verschiedene Reaktionsbedingungen untersucht. Sie fanden heraus, dass ohne Wasserdampf im Abgas die Selektivität konstant bei ca. 20 % liegt. Mit einem für Dieselmotoren weitestgehend typischen Wasserdampfanteil von ca. 7 % weist die Selektivität ein wie auch hier beobachtetes temperaturabhängiges Verhalten auf, mit einer Selektivität von ca. 4,5 % bei 300°C bis zu 19,5 % bei 450°C. Die Verwendung einer temperaturabhängigen Selektivität, hier in Form einer gesonderten Reaktionsgleichung für die unvollständige Oxidation, kann somit nicht vernachlässigt werden.

Abbildung 5.9 zeigt den gerechneten und gemessenen Molanteil von CO am Austritt des DPFs nach einer Feinabstimmung der reaktionskinetischen Parameter. Die Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung ist im Allgemeinen recht gut. Der Anstieg beim Regenerationsbeginn wird sehr gut getroffen. Lediglich kurze Einbrüche des Molanteils im Bereich von 350 - 400 s werden durch die Simulation nicht wiedergegeben.

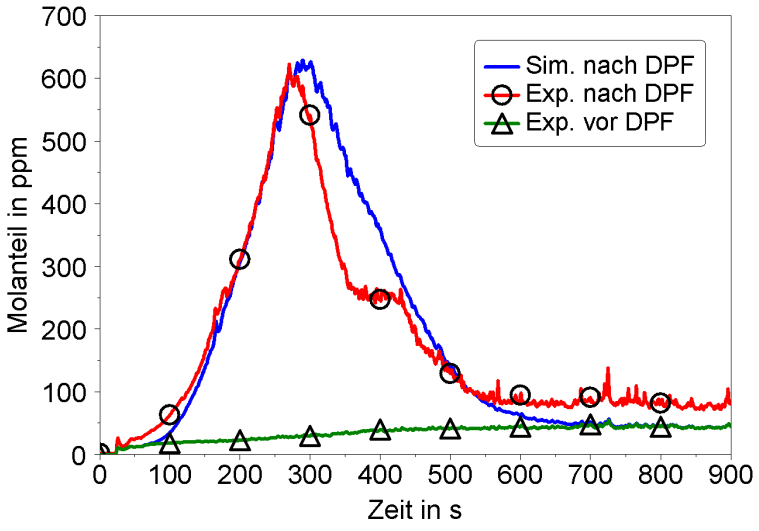


Abb. 5.9: *CO-Molanteile der Kalibrierung während der Regeneration*

Große Unterschiede sind jedoch beim Druckverlust zu verzeichnen. Im Bereich des Regenerationsbeginns (50 - 200 s), in dem der DPF stark aufgeheizt wird, ist ein großes Überschwingen der Simulation zu erkennen. Nach Einsetzen der Regeneration (Beginn des Rußabbrands) sind weiterhin starke Abweichungen zu verzeichen, die allerdings mit fortwährender Regenerationszeit (sinkende Rußbeladung) abnehmen und zu einer Übereinstimmung im stationären Bereich nach der Regeneration (regenerierter/leerer Filter) führen. Die Tatsache, dass der stationäre Druckverlust vor und nach der Regeneration richtig wiedergegeben wird, führt zu der Feststellung, dass ein erneutes Anpassen der Druckverlustparameter keine Verbesserung in den genannten Bereichen bewirken würde. Inwiefern Modellerweiterungen zu einer Verbesserung führen können, wird in Abschn. 5.7 diskutiert.

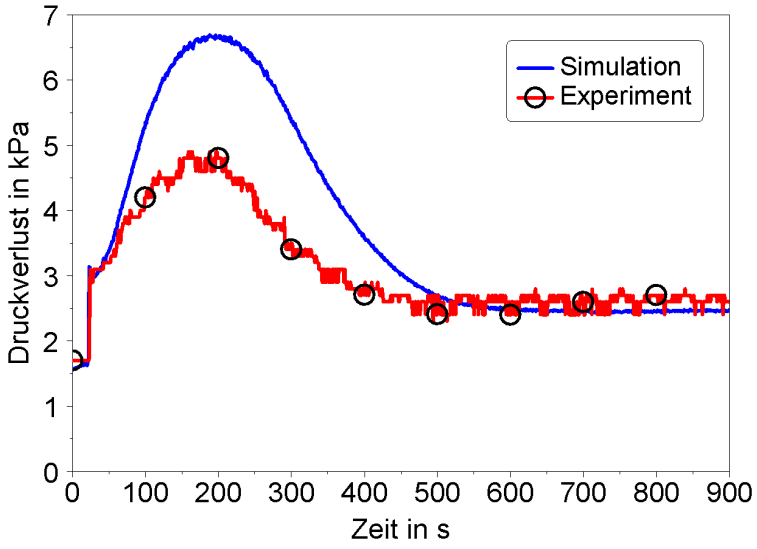
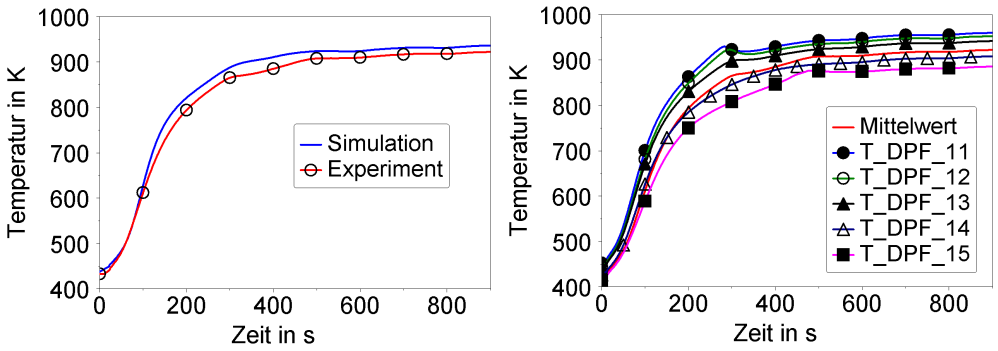


Abb. 5.10: *Druckverlustverlauf der Kalibrierung während der Regeneration*

Zum Vergleich der Temperaturen wird auf eine einfache Mittelwertbildung zurückgegriffen, die in guter Näherung für eine Pfropfenströmung mit geringen Temperaturdifferenzen entlang des Radius gilt (siehe Abb. 5.11b):

$$\bar{T} = \frac{\sum_j \bar{T}_j \, A_j}{A_{\mathrm{DPF}}} \; . \tag{5.8}$$

Abbildung 5.11a zeigt den Rechnungs-/Messungsvergleich der mittleren Temperatur. Verglichen wird hierbei die mittlere Gasaustrittstemperatur der Simulation mit der gemittelten Temperatur der Monoliththerm oelemente der Ebene M4 (siehe Abschn. 5.1). Das Thermoelement nach dem Filter T7 (siehe Abb. 5.1) wird nicht verwendet, da diese Messstelle weit entfernt vom Filter am Ende des Gehäuses positioniert ist.



(a) Temperaturvergleich (b) Mittelwertbildung

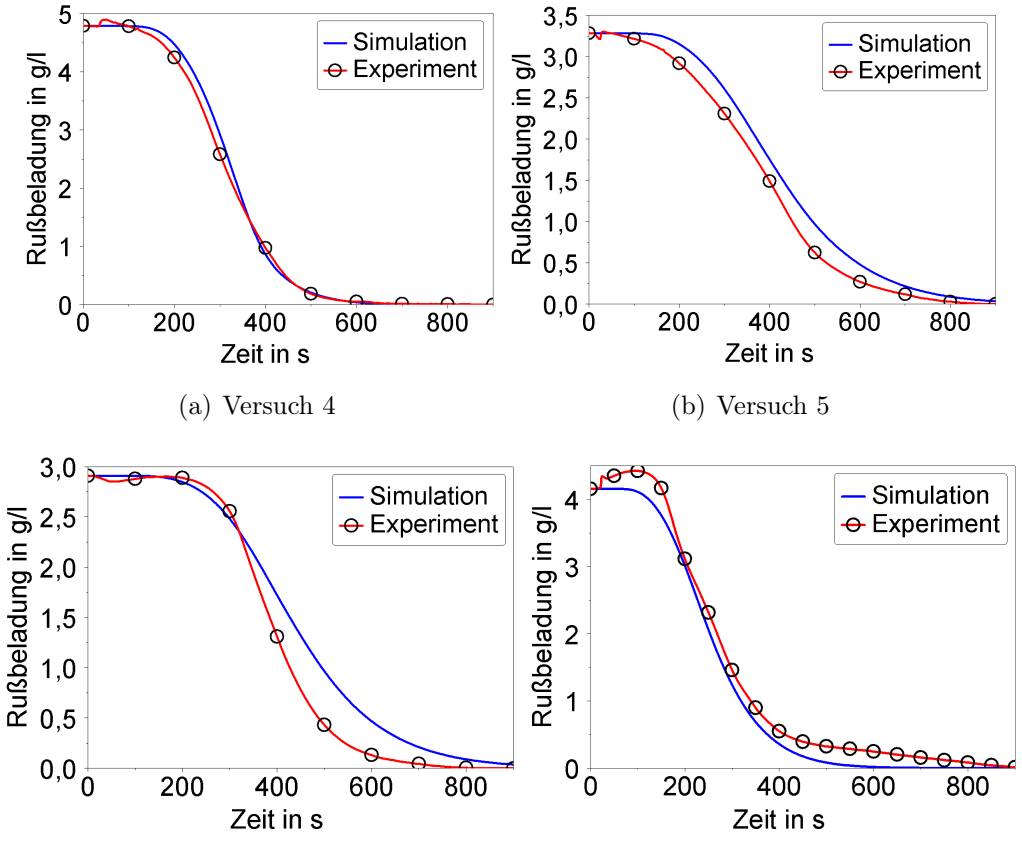
Abb. 5.11: *Temperaturverlauf der Kalibrierung während der Regeneration*

Die Übereinstimmung zwischen gerechneter und gemessener Temperatur ist, bis auf geringe Abweichungen im Anstieg und im stationären Endwert, sehr gut. Die unter-

schiedliche Steigung im Bereich ansteigender Temperaturen ist dabei der Vernachlässigung des Klebers der segmentierten Bauweise zuzuweisen. Eine Sensitivitätsanalyse hat ergeben, dass der Kleber in vereinfachter Weise über eine Erhöhung der thermischen Masse um 10 % mitberücksichtigt werden kann.

5.6 Testen der Anwendbarkeit – Validierung

Anhand der anderen vier Versuche aus Tab. 5.2 soll das Modell auf seine Anwendbarkeit getestet werden. Da die Regeneration bei diesen Versuchen unter anderen Bedingungen stattfandt – variiert wurden Last, Einspritzmenge, Massenstrom und Rußbeladung – kann somit geprüft werden, ob die erhaltenen reaktionskinetischen Parameter auch für andere Zustände gelten. Sollte dieses nicht der Fall sein, kann nach einer Anpassung der kinetischen Parameter zwar der Regenerationsverlauf für einen Betriebspunkt immer wieder reproduziert werden, das Simulationstool jedoch wäre unbrauchbar, da Fallunterscheidungen und Sensitivitätsanalysen nicht gerechnet werden könnten.



(a) Versuch 4

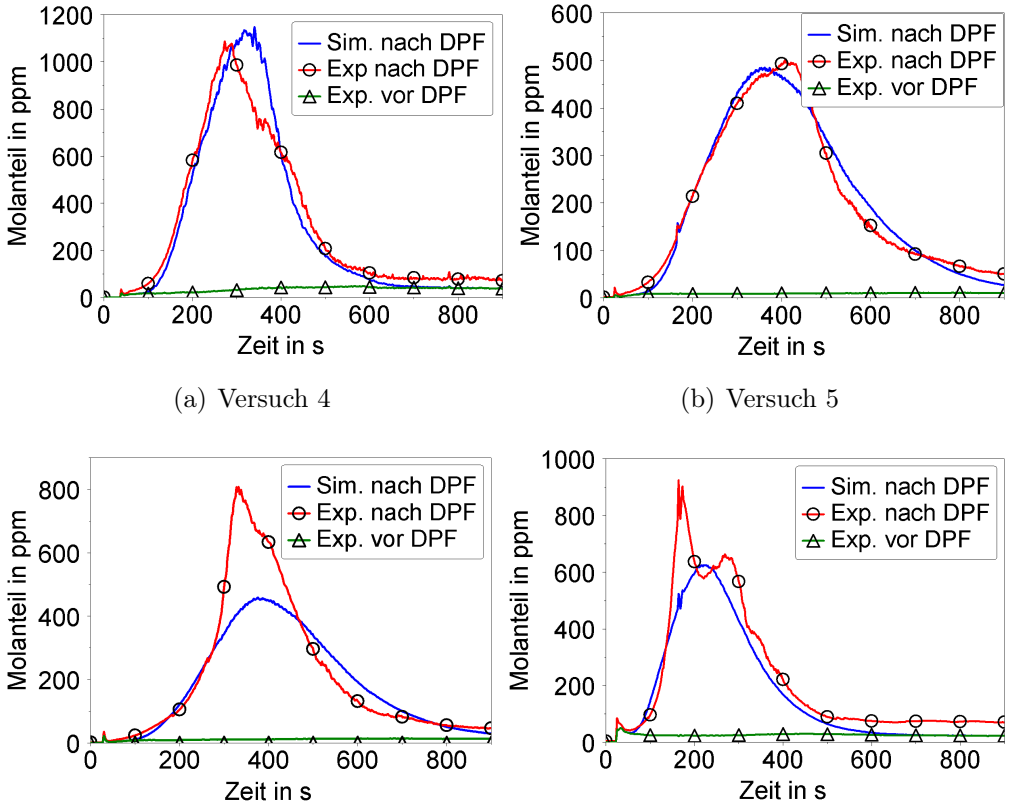
(b) Versuch 5

(c) Versuch 2

(d) Versuch 9

Abb. 5.12: *Rußverlauf der Validierung während der Regeneration*

Abbildung 5.12 zeigt die Rußverläufe der Validierungsrechnungen. Für die Versuche 4, 5 und eingeschränkt auch Versuch 9 ist eine relativ gute Übereinstimmung festzuhalten. Die Rußverläufe von Simulation und Messung sind parallel zueinander und das Einsetzen des Rußabbrands wird gut getroffen. Die bereits bei der Kalibrierung beobachtete zeitliche Verschiebung ist auch hier zu erkennen. Bei Versuch 2 hingegen treten teilweise deutliche Abweichungen auf. Das Einsetzen des Rußabbrands wird zwar auch hier gut wiedergegeben, die Rußabbrandkurven verlaufen jedoch nicht parallel zueinander. Folglich braucht die Simulation wegen des flacheren Verlaufs ca. 150 s länger für die Regeneration. Die Güte der CO-Molanteile verhält sich analog. Auch hier sind hauptsächlich für Versuch 2 größere Abweichungen zu beobachten, wobei auch Versuch 9 durch die ungewöhnlichen Spitzen im Experiment auffällt.



(a) Versuch 4

(b) Versuch 5

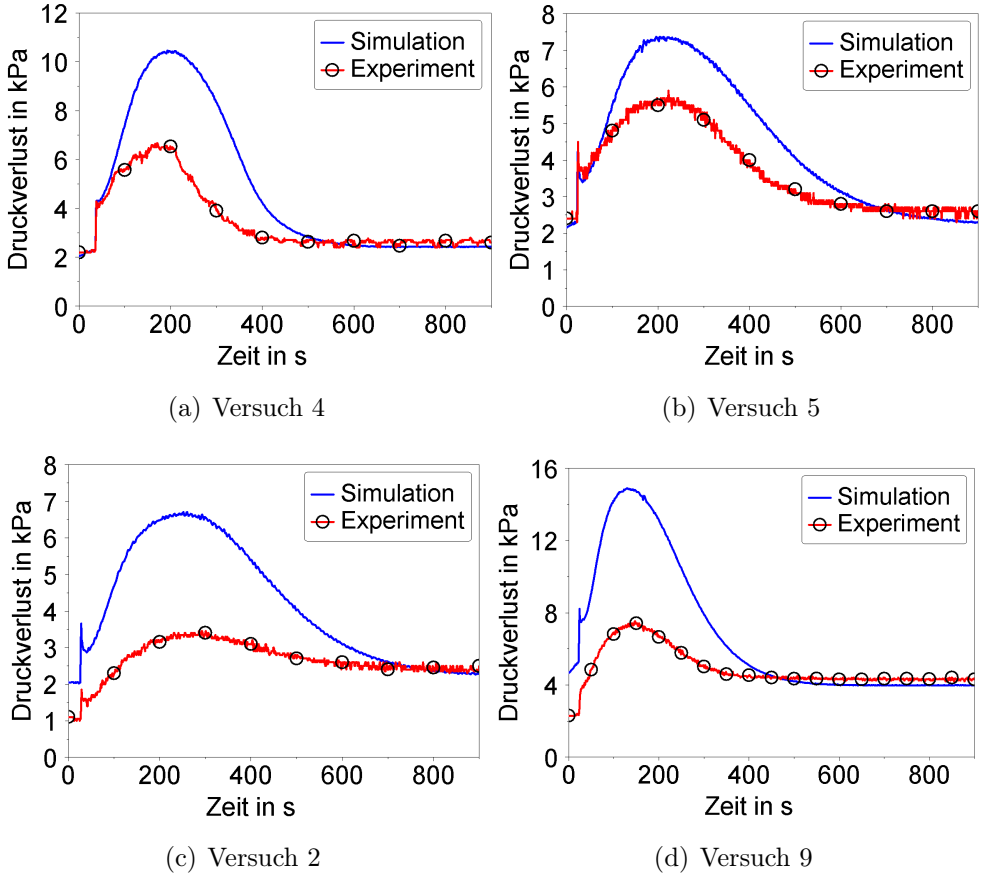
(c) Versuch 2

(d) Versuch 9

Abb. 5.13: *CO-Molanteile der Validierung während der Regeneration*

Bei den Druckverlustverläufen sind wie bei der Kalibrierung (siehe Abschn. 5.5) Abweichungen besonders im Bereich des Aufheizens des Filters zu erkennen. Ein Rechnungs-/Messungsvergleich der stationären Werte vor und nach der Regeneration zeigt für die Versuche 4 und 5 eine gute Übereinstimmung. Auffallend sind die großen Abweichungen bei den Versuchen 2 und 9 im stationären Bereich vor der Regeneration. Diese Abweichungen können weder durch eine erneute Anpassung der Druckverlustparameter noch durch eine Veränderung des Rußabbrands verbessert

werden, ohne dabei zu einer Verschlechterung bei den anderen Versuchen zu führen. Zu erwähnen ist, dass für die stationäre Anpassung der Druckverlustparameter die Versuche 2 und 9 nicht berücksichtigt wurden. Als Grund sind die starken Abweichungen bzw. inkonsistenten Werte der gemessenen Druckverluste zu nennen.



(a) Versuch 4 (b) Versuch 5

(c) Versuch 2 (d) Versuch 9

Abb. 5.14: *Druckverlustverlauf der Validierung während der Regeneration*

Abbildung 5.15 zeigt gemessene Werte für Massenstrom, Temperatur und Druckverlust stationärer Punkte vor und nach der Regeneration.

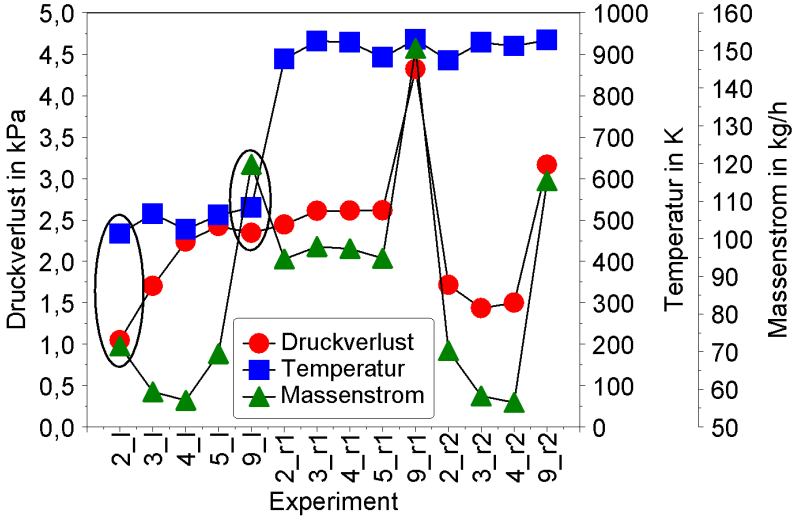
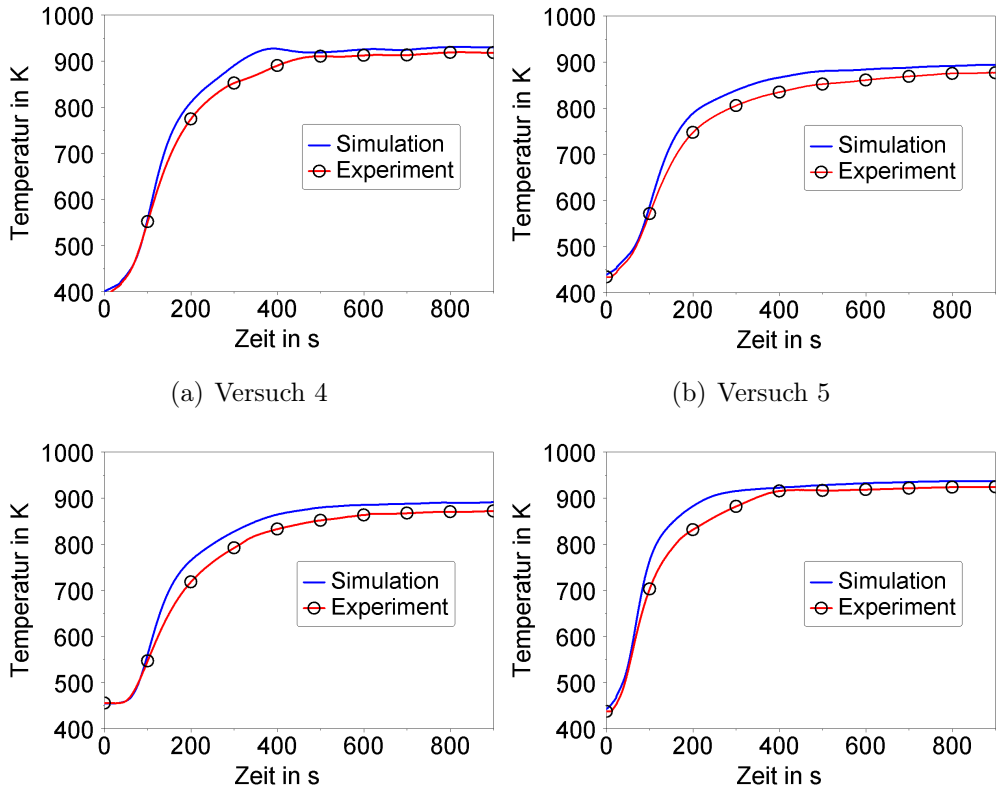


Abb. 5.15: *Gemessener Druckverlust, Temperatur und Massenstrom für verschiedene Zustände*

Geht man von einer homogenen Rußbeladung im gesamten Filter aus, so müsste der Druckverlust bei sich ändernden Temperaturen und Massenströmen die gleichen Tendenzen aufzeigen. Vergleicht man Versuch 9 mit Versuch 4 im beladenen Zustand (4_l und 9_l in Abb. 5.15), die beide eine ähnliche Gesamtrußbeladung aufweisen, so ist trotz stark abweichender Massenströme bei gleicher Temperatur der Druckverlust nahezu gleich. Eine höhere Durchströmung des Filters in Versuch 9 führt nicht zu dem erwarteten höheren Druckverlust. Für die Diskussion der Inkonsistenz in Versuch 2 wird Versuch 5 hinzugezogen (2_l und 5_l in Abb. 5.15). Auch hier weisen beide Versuche eine ähnliche Gesamtrußbeladung auf. Trotz annähernd gleicher Temperaturen und Massenströme ist der Druckverlust in Versuch 5 jedoch mehr als doppelt so groß. Inwiefern Modellerweiterungen bzw. 2D-Simulationen die Ergebnisse beeinflussen und möglicherweise Inkonsistenzen erklären können, wird in Abschn. 5.7 diskutiert.

Abschließend zeigt Abb. 5.16 die simulierten und gemessenen mittleren Temperaturen am Austritt des Filters, die ebenfalls eine gute Übereinstimmung aufweisen. Geringe Abweichungen sind wie bei der Kalibirierung lediglich im stationären Endwert und im Anstieg zu verzeichnen.



(a) Versuch 4 (b) Versuch 5

(c) Versuch 2 (d) Versuch 9

Abb. 5.16: *Temperaturverlauf der Validierung während der Regeneration*

5.7 Modellerweiterungen/2D-Simulationen und deren Einfluss auf die Ergebnisse

Aufgrund der Ergebnisse aus dem vorherigen Abschnitt, aber vor allem wegen der großen Abweichungen zwischen gerechnetem und gemessenem Druckverlust, werden insgesamt drei Modellerweiterungen (siehe Abschn. 3.3) implementiert:

a) Korrektur des Wandmassenstroms,

b) schleichende Strömung,

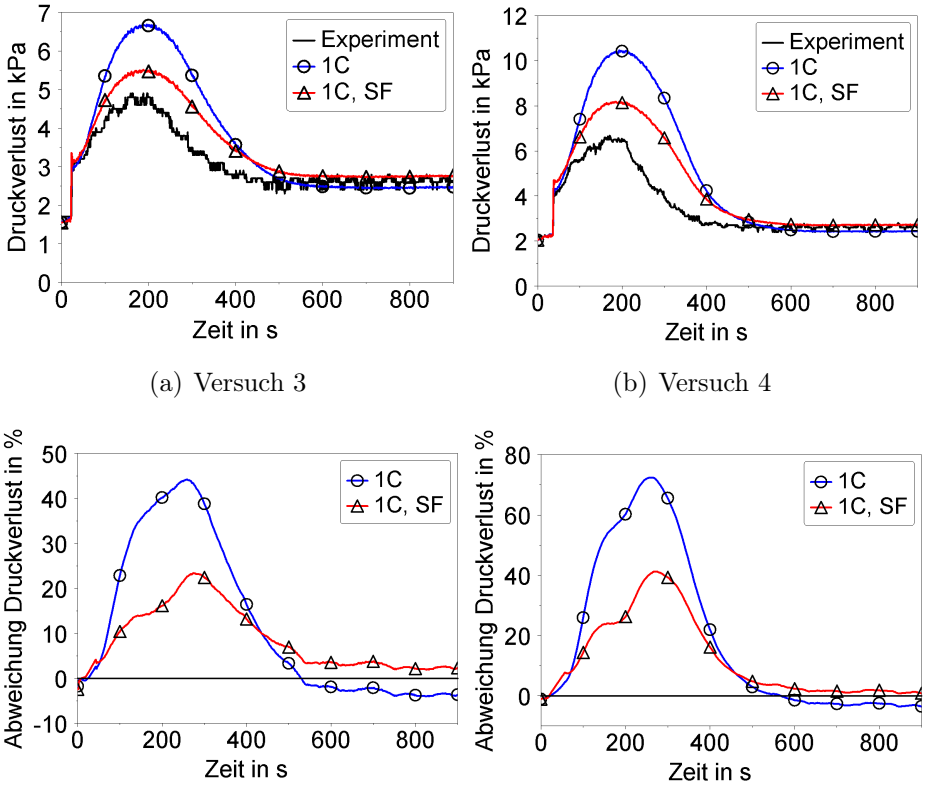
c) 2-Komponenten-Modell.

Die Modellerweiterung der Korrektur des Wandmassenstroms, bei der ein sich entlang des Rußkuchens ändernder Wandmassenstrom aufgrund von Querschnittsänderungen mitberücksichtigt wird, spielt sowohl für den Druckverlust als auch für den Rußabbrand eine untergeordnete Rolle. Aus diesem Grund werden im Folgenden lediglich die Modellerweiterungen der schleichenden Strömung und des 2-Komponenten-Modells diskutiert, da deren Einfluss auf die Ergebnisse am größten ist. Der Vergleich der Ergebnisse der Modellerweiterungen wird an Versuch 3 und parallel dazu auch an Versuch 4 diskutiert. Es werden zwei Versuche zur Diskussion hinzugezogen um zu gewährleisten, dass die Modellerweiterungen bei beiden den gleichen Effekt zeigen.

Für die Legende der Diagramme werden folgende Abkürzungen verwendet:

- 1C – 1-Komponenten-Modell,
- 2C – 2-Komponenten-Modell,
- SF – schleichende Strömung,
- HR – stärkerer Rußabbrand bei 1C,
- HPSK – stärkerer Rußabbrand innerhalb der Pore,
- SL0 – Rußbeladung innerhalb der Pore = 0,
- HD – höhere Rußdichte,
- NUSL – ungleichmäßige Rußbeladung.

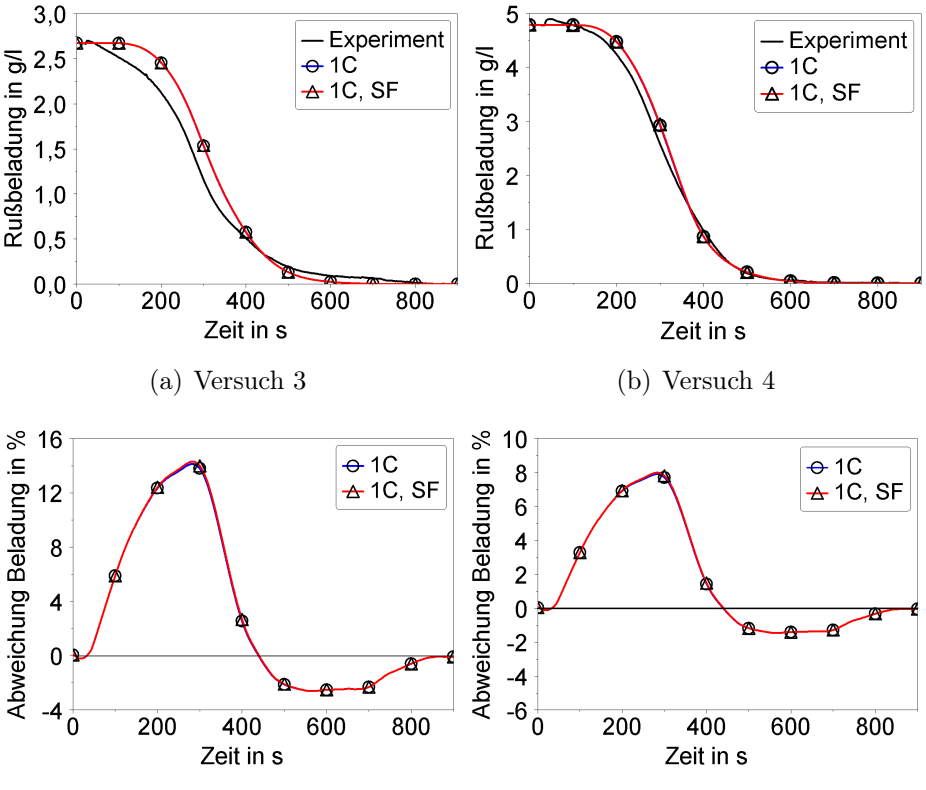
Zuerst wird die Modellerweiterung der schleichenden Strömung diskutiert. Wie in Abschn. 3.3 erläutert, berücksichtigt die schleichende Strömung einen erhöhten Durchfluss in Form einer molekularen Strömung. Dieser erhöhte Durchfluss tritt bei der Durchströmung des Rußes auf, wodurch es zu den bereits diskutierten Abweichungen zwischen Simulation und Messung kommt.



(a) Versuch 3 (b) Versuch 4

(c) Versuch 3 (d) Versuch 4

Abb. 5.17: *Einfluss der schleichenden Strömung auf den Druckverlust*



(a) Versuch 3 (b) Versuch 4

(c) Versuch 3 (d) Versuch 4

Abb. 5.18: *Einfluss der schleichenden Strömung auf den Verlauf der Rußbeladung*

Abbildung 5.17 zeigt den Einfluss der Modellerweiterung der schleichenden Strömung auf den Druckverlust. Es ist deutlich zu erkennen, dass eine immense Verbesserung erreicht werden kann. Besonders im Bereich des Aufheizens werden die Abweichungen mehr als halbiert. Ein Einfluss auf die Rußverläufe ist nicht zu verzeichnen, wie Abb. 5.18 zeigt. Der modellierte Rußabbrand ist druckunabhängig.

Als zweite wesentliche Modellerweiterung wird die Rußablagerung nicht mehr nur durch eine reine Kuchenfiltration modelliert, sondern es wird zusätzlich auch die Tiefenfiltration berücksichtigt. Bei der Tiefenfiltration lagert sich der Ruß innerhalb der Poren ab. Parallel hierzu bildet sich langsam eine Rußschicht an der Wandoberfläche aus, die dann, nach Ausbildung einer zusammenhängenden Rußschicht, die eigentliche Filtration übernimmt.

Im Folgenden wird zunächst der Einfluss des Modells auf die Filterbeladung und im Anschluss der Einfluss auf den Regenerationsverlauf betrachtet. Abbildung 5.19 zeigt den Unterschied zwischen Tiefen- und Kuchenfiltration anhand von Beladungkurven, die bei einem konstanten Normvolumenstrom aufgenommen wurden. Der starke Anstieg bei kleinen Beladungen – im Allgemeinen bis ca. 0,3 g/l – und der daraufhin folgende flachere, nahezu lineare Anstieg des Druckverlusts sind deutlich zu erkennen. Dabei herrscht bis ca. 0,1 g/l reine Tiefenfiltration, d. h. der Ruß lagert sich nur innerhalb der Poren ab [61], die über den Übergangsbereich in die reine Kuchenfiltration übergeht. Anhand dieser Druckverlustkurven und der dazugehörigen Steigungen lässt sich der Anstieg des Drucks in Abhängigkeit von der Rußbeladung für den Poren- und Kuchenruß ermitteln. Mit Hilfe dieser Steigungen werden dann die Verhältnisse der Druckverlustparameter des Poren- zu denen des Kuchenrußes für den linearen Anteil der Darcy-Gleichung (C_α in Gl. 3.143) und den quadratischen Anteil der Forchheimer-Gleichung (C_β in Gl. 3.144) bestimmt. Ferner zeigt Abb. 5.19 den Einfluss der Porosität der Filterwand wie auch der Geometrie unkatalysierter SiC-Filter auf den Druckverlust. Unterschieden wird zwischen vier Varianten, wobei als Ausgangspunkt die Basis-Variante (200/15, Porosität 46 %) dient. Die Quantität der Änderung von Porosität bzw. Zelldichte und Wandstärke ist wie folgt:

1. Filter A → Filter B: Porosität der Filterwand erhöht sich um ca. 13 % ,
2. Filter B → Filter C: Wandstärke verringert sich um 20 %, die Zelldichte nimmt um 50 % zu,
3. Filter C → Filter D: Porosität der Filterwand erhöht sich um ca. 15 % .

Eine Erhöhung der Porosität führt zu größeren Poren und folglich zu höheren Permeabilitäten: Der Druckverlust sinkt. Das gleiche gilt auch für den Einfluss der Wandstärke. Mit sinkender Wandstärke wird die Länge der Pore verkürzt, was wiederum zu einem geringeren Druckverlust führt.

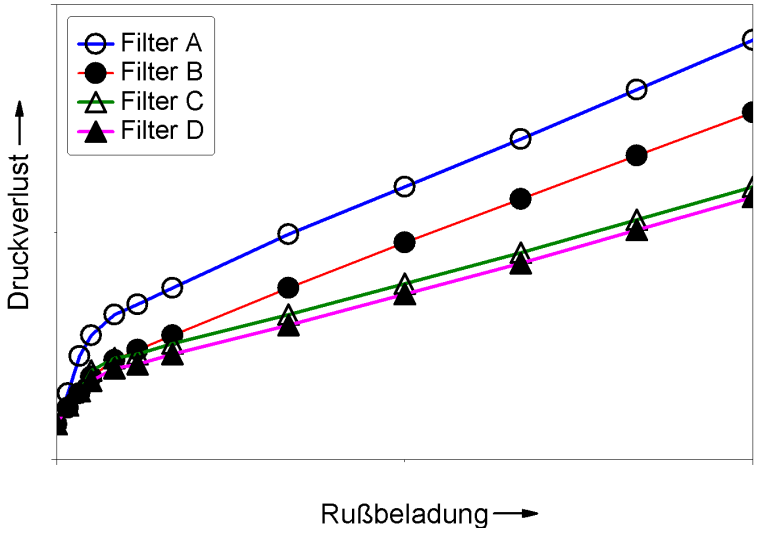


Abb. 5.19: *Beladungskurven unkatalysierter SiC-Filter [61]*

Abbildung 5.20 zeigt simulierte Filterbeladungen für das 1- bzw. 2-Komponenten-Modell. Durchgeführt wurden die Simulationen bei einem Normvolumenstrom von 1,2 m^3/min und einer Temperatur von 100°C. Die Beladung des Filters wurde nicht dynamisch simuliert, sondern bei diskreten Werten für die Porenruß- und die Kuchenrußbeladung ohne eine Berücksichtigung des Übergangsbereichs. Deutlich zu erkennen ist, dass durch die Modellerweiterung der Tiefenfiltration, genau wie bei den gemessenen Druckverlustkurven, allgemein zwischen zwei Regionen unterschieden werden kann:

Region 1: Druckverlust verursacht innerhalb der Pore,

Region 2: Druckverlustanteil des Kuchenrußes.

Ferner erkennt man, dass das Verhältnis der Steigungen des Druckverlustanstiegs von Poren- und Kuchenruß mit dem jeweiligen gemessener Beladungskurven (siehe Abb. 5.19) gut übereinstimmt.

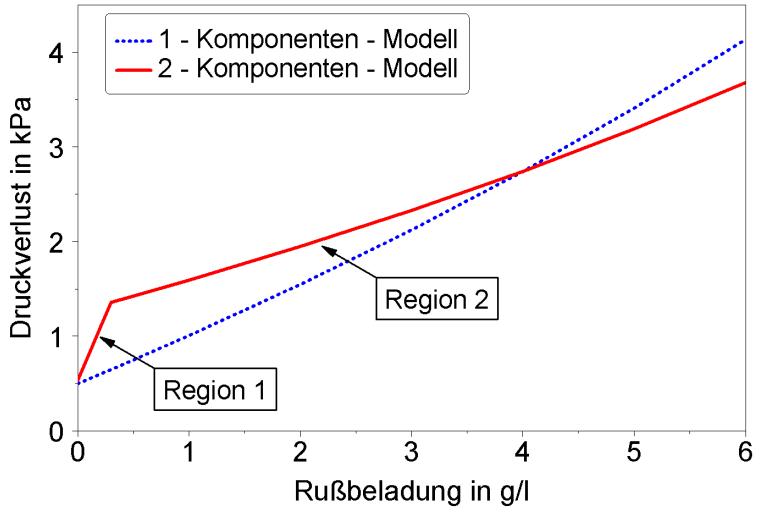
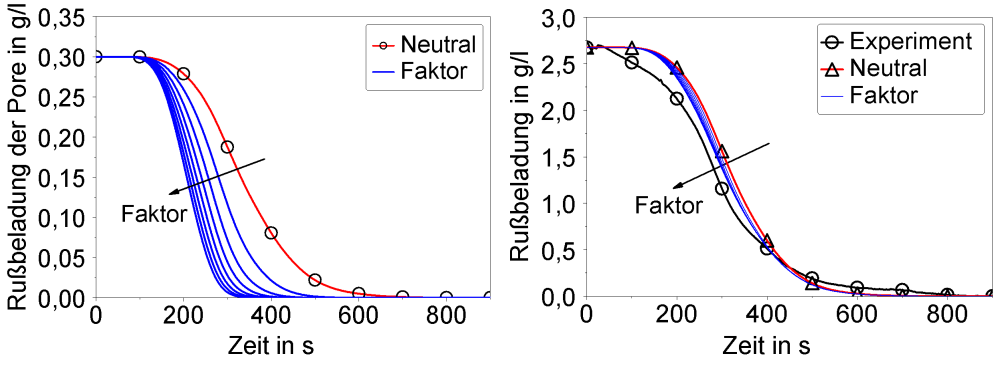


Abb. 5.20: *Vergleich der Beladungskurven für das 1-/2-Komponenten-Modell*

Der Einfluss des 2-Komponenten-Modells auf die Regeneration soll anhand von Rußverläufen und Druckverlustkurven untersucht werden. Durch die Erweiterung zu einem 2-Komponenten-Modell ist ein weiterer Freiheitsgrad gegeben. Ein Proportionalitätsfaktor für den Rußabbrand innerhalb der Pore erlaubt eine Veränderung der Rußkinetik des Porenrußabbrands. Um zu verdeutlichen, welchen Einfluss eine schrittweise Erhöhung der kinetischen Parameter für den Rußabbrand innerhalb der Pore haben kann, wird eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt. In dieser wird der Proportionalitätsfaktor von 2 bis 8 variiert.

Abbildung 5.21a zeigt deutlich, dass eine Erhöhung des Porenrußabbrands zu einem steileren Verlauf des Porenrußverlaufs führt. Der Einfluss auf den Gesamtrußverlauf hingegen ist, wie Abb. 5.21b verdeutlicht, aufgrund des kleinen Porenruß/Kuchenruß-Verhältnisses bedeutend geringer.

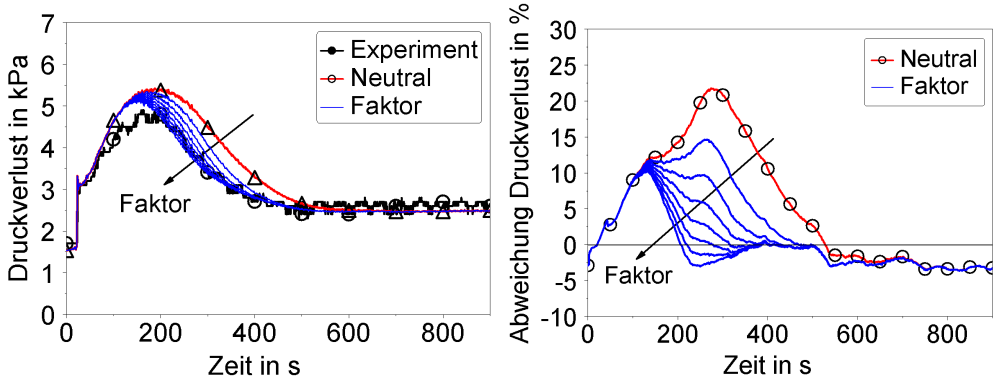


(a) Porenrußbeladung (b) Gesamtrußbeladung

Abb. 5.21: *Einfluss der Parametervariation der Porenrußkinetik auf die Rußverläufe*

Betrachtet man den Druckverlust, so hat das 2-Komponeten-Modell mit veränderter Reaktionskinetik des Porenrußabbrands einen starken Einfluss auf die Ergebnisse. Abbildung 5.22a zeigt die gerechneten Druckverlustverläufe bei einer Erhöhung der Frequenzfaktoren des Porenrußes. Es ist deutlich zu erkennen, dass besonders nach dem Aufheizvorgang durch den erhöhten Porenrußabbrand der gemessene Druckverlust besser abgebildet werden kann. Ab einem Faktor von 5 kommt es zu einem Überschwingen der Abweichung des Druckverlusts in den negativen Bereich. Da ein Überschwingen nicht erwünscht ist, wird für die weiteren Berechnungen ein Faktor von 4,5 verwendet, der bei Betrachtung der Druckverlustabweichung kurz vor einem Überschwingen ermittelt wird.

Abschließend kann festgehalten werden, dass eine Erhöhung des Porenrußabbrands zu einer starken Reduktion der Abweichungen beim Druckverlust führt, was anhand des Verhältnisses des mit der Beladung ansteigenden Druckverlusts von Poren- zu Kuchenruß $C_{pore,cake}$ (siehe Abschn. 3.3.3) erklärt werden kann.

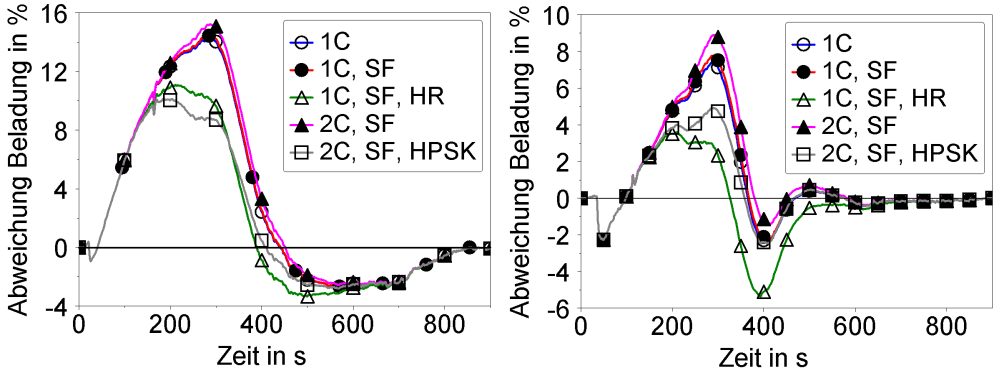


(a) Druckverlust (b) Druckverlustabweichung

Abb. 5.22: *Einfluss der Parametervariation der Porenrußkinetik auf den Druckverlust*

Als nächstes werden in den beiden folgenden Abbildungen verschiedene Modelle und Parametervariationen miteinander verglichen. Dargestellt sind die Abweichungen der Gesamtrußbeladung in Abb. 5.23 und die des Druckverlusts in Abb. 5.24 für die Versuche 3 und 4. Folgende Abkürzungen werden in den Abbildungen verwendet:

- 1C – 1-Komponenten-Modell,
- 1C, SF – 1-Komponenten-Modell mit schleichender Strömung,
- 1C, SF, HR – 1-Komponenten-Modell mit schleichender Strömung und erhöhtem Rußabbrand,
- 2C, SF – 2-Komponenten-Modell mit schleichender Strömung,
- 2C, SF, HPSK – 2-Komponenten-Modell mit schleichender Strömung und erhöhtem Porenrußabbrand.



(a) Versuch 3 (b) Versuch 4

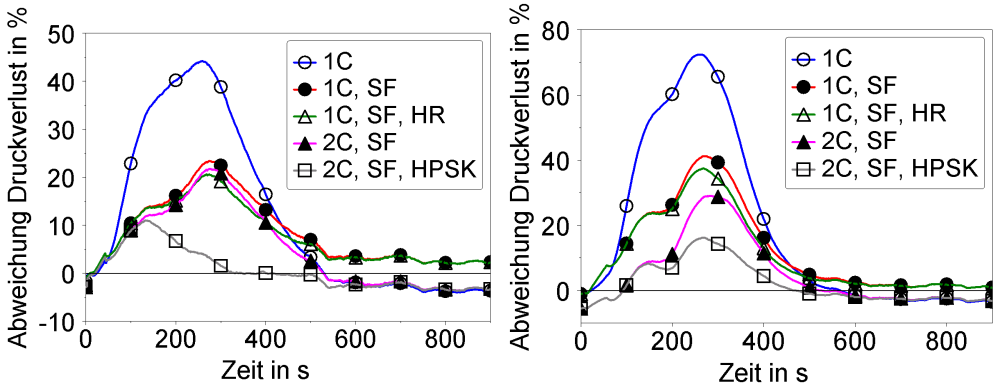
Abb. 5.23: *Einfluss verschiedener Modelle auf die Abweichung der Rußbeladung*

Der erhöhte Rußabbrand wird durch eine Multiplikation der Aktivierungsenergie mit dem Faktor 0,98 und des Frequenzfaktors mit dem Faktor 0,5 erreicht. In der Summe wird dadurch ein schnellerer Rußabbrand erreicht, der wiederum zu einem steileren Rußverlauf führt. Vergleicht man **1C, SF, HR** mit **2C, SF, HPSK**, so

erkennt man, dass im Hauptteil der Regeneration – 150 bis 400 s – eine vergleichbare Reduktion stattfindet, wohingegen im Bereich der abklingenden Regeneration – 350 bis 600 s – die Variante **1C, SF, HR** zu einem starken Überschwingen neigt. Die Variante **2C, SF, HPSK** hingegen weist in diesem Bereich nur einen geringen Unterschied zu den Varianten **1C** bzw. **1C, SF** und **2C, SF** auf.

Vergleicht man den Einfluss der verschiedenen Varianten auf die Abweichung der Druckverluste, so kann festgehalten werden, dass die Implementierung der schleichenden Strömung eine sehr deutliche Reduktion der Druckverlustabweichung zur Folge hat (vergleiche **1C** mit **1C, SF** bzw. **2C, SF**). Die Erhöhung des gesamten Rußabbrands (**1C, SF, HR**) führt zwar zu einem verbesserten Verlauf der Rußbeladung im Hauptteil der Regeneration, jedoch zu keiner Verbesserung beim Druckverlust. Erst die Variante **2C, SF, HPSK** kann auch die Abweichung beim Druckverlust weiter verringern (siehe auch S. 104).

Die Abweichung, die zwischen den Varianten **1C, SF** und **2C, SF** auftritt, kommt hauptsächlich durch die erneute Anpassung der Druckverlustparameter zu Stande, die nach einer Modellerweiterung notwendig ist. Im Gegensatz zu Versuch 3, bei dem die Abweichung vernachlässigbar gering ist, kam es bei Versuch 4 auch zu einer erneuten Anpassung der Druckverlustparameter des leeren Filters, d.h. der Permeabilitäten der Filterwände. Die Folge ist eine Verschiebung und somit eine größere Abweichung zwischen **1C, SF** und **2C, SF**, die einen vermeintlichen Unterschied zwischen 1-Komponenten-Modell und 2-Komponenten-Modell ohne erhöhten Porenrußabbrand vermuten lässt.



(a) Versuch 3 (b) Versuch 4

Abb. 5.24: *Einfluss verschiedener Modelle auf die Abweichung des Druckverlusts*

Zum Abschluss der DPF-Validierung soll Versuch 9 – einer der problematischen Versuche, bei denen in den Validierungsrechnungen jeweils eine große Abweichung beim Druckverlust auftrat (siehe Abb. 5.14), und eine Diskrepanz zu den anderen Versuchen bezüglich des gemessenen stationären Druckverlusts festgestellt wurde (siehe Abb. 5.15) – näher untersucht werden. Eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz

könnte eine im Vorfeld gescheiterte Regeneration sein, die anscheinend zu veränderten Bedingungen für die direkt darauf folgende Regeneration – Abbrand des nach der gescheiterten Regeneration verbleibenden Rußes – führt.

Im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse sollen drei Fälle untersucht werden:

1. Teilregeneration des Rußes nur innerhalb der Poren – 2C, SF, HPSK, PS0
   ⇒ der gesamte Ruß wird als Kuchenruß vorgegeben,
2. Verdichtung des Rußes während versuchter Regeneration aufgrund des erhöhten Massenstroms und Teilregeneration des Rußes nur innerhalb der Pore – 2C, SF, HPSK, PS0, HD
   ⇒ Erhöhen der Rußdichte und Vorgabe des gesamten Rußes als Kuchenruß,
3. Teilregeneration in der Mitte des Filters – 2C, SF, HPSK, NUSL
   ⇒ inhomogene Rußbeladung als Startparameter.

Die Simulation eines teilregenerierten Filters für den Fall einer reinen Regeneration in der Mitte des Filters muss 2-dimensional erfolgen, wobei dem Filter eine inhomogene Rußbeladung vorgegeben wird. Die gewählte Konfiguration einer inhomogenen Rußbeladung sieht einen sprunghaften Anstieg dieser ab einem Filterradius von 0,0379 m vor. Gewählt wurde dieser bedingt durch die Annahme, dass der Filter bis zur Hälfte des Radius regeneriert sein sollte. Ferner sollte der sprunghafte Anstieg der Rußbeladung an einem Gitterpunkt der 2D-Simulation (10 äquidistante Gitterpunkte) liegen.

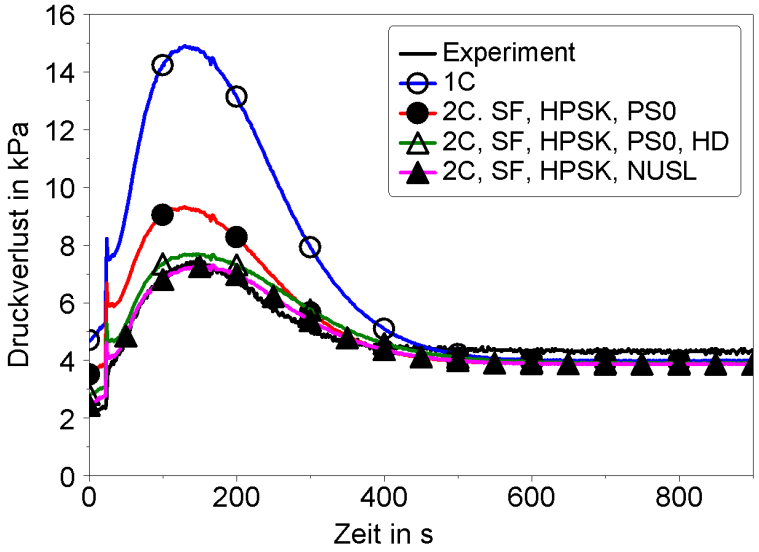
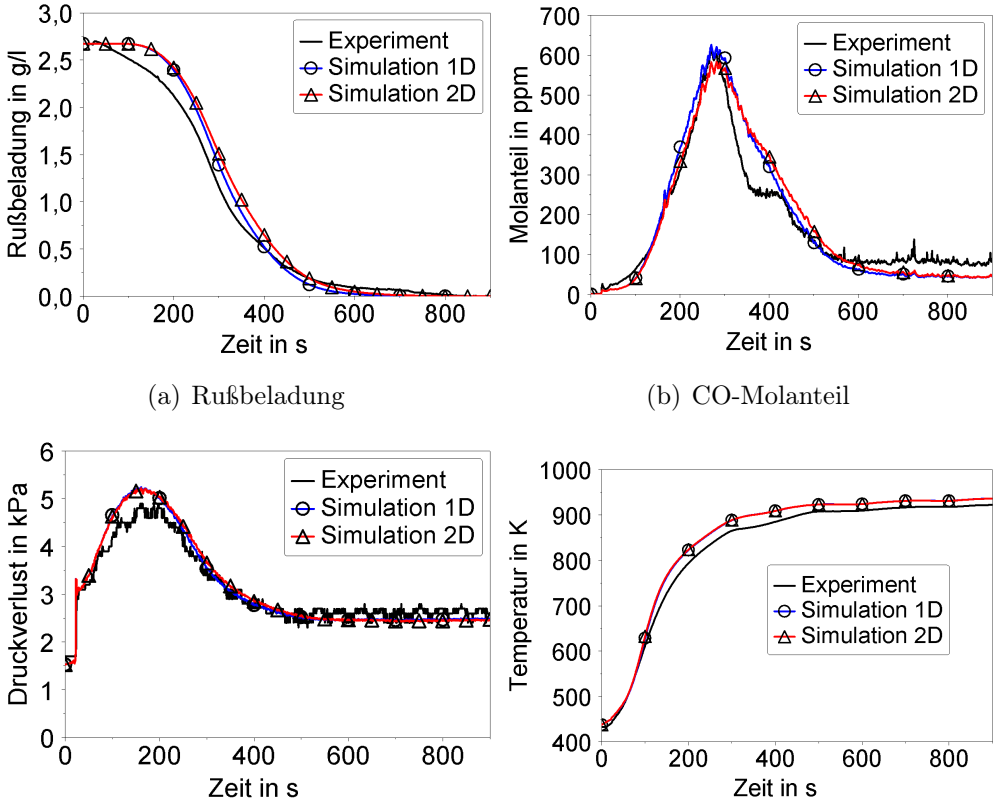


Abb. 5.25: *Druckverlust der Studie zum teilregenerierten Versuch 9*

Abbildung 5.25 vergleicht die verschiedenen Testfälle. Es ist deutlich zu erkennen, dass für den Fall einer inhomogenen Rußbeladung der Verlauf des Druckverlusts am besten mit der Messung übereinstimmt. Vor allem der stationäre Druckverlust

vor der Regeneration stimmt jetzt mit der Messung überein (siehe Abschn. 5.6). Auch bei den Rußverläufen bzw. den Verläufen des CO-Molanteils ist der Unterschied zwischen Simulation und Messung für den Fall der inhomogenen Beladung am geringsten (siehe Anhang B.1). Der Fall höherer Dichte **2C, SF, HPSK, PS0, HD** zeigt für den Druckverlust zwar ein ähnliches Verhalten wie die Variante **2C, SF, HPSK, NUSL**, jedoch sind die Abweichungen beim Rußverlauf und den CO-Molanteilen größer. Eine genaue Klärung kann jedoch nicht erfolgen, da hierzu der Filter hätte zwischen den beiden Regenerationen vermessen werden müssen. Aufgrund der Simulationsergebnisse scheint der Fall der inhomogenen Beladung jedoch am wahrscheinlichsten.

Unterschiede zwischen 1D- und 2D-Simulationen, beispielhaft für den Versuch 3, 2-Komponenten-Modell und höherer Porenrußabbrand dargestellt, zeigt Abb. 5.26.



(a) Rußbeladung

(b) CO-Molanteil

(c) Druckverlust

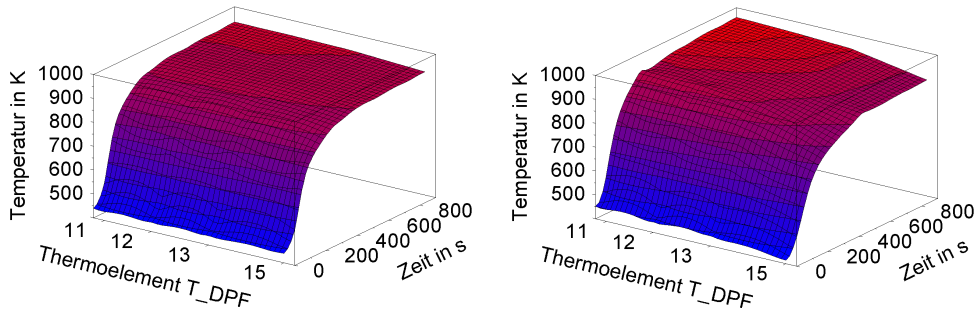
(d) mittlere Austrittstemperatur

Abb. 5.26: *Vergleich der 1D-/2D-Simulation für Versuch 3, 2-Komponenten-Modell, höherer Porenrußabbrand*

Vergleicht man den Druckverlust und die gemittelte Austrittstemperatur der 1D- und 2D-Simulation miteinander, ist keine nennenswerte Abweichung zu erkennen. Lediglich beim Rußabbrand sind Unterschiede zu verzeichnen. Durch das 2D-Temperaturprofil kommt es zum Rand hin zu einem Temperaturabfall (siehe T_DPF_15 in Anhang B.2, Abb. B.2d) und dadurch auch zu einem geringeren Umsatz des Rußes.

Dies führt dazu, dass die 2D-Simulation mehr Zeit zur vollständigen Regeneration benötigt. Ein analoger Effekt ist bei den CO-Molanteilen zu verzeichnen, wo ebenfalls eine Verschiebung der Molanteilkurve der 2D-Simulation zu späteren Zeiten erfolgt.

Abschließend wird in Abb. 5.27 die berechnete Temperaturverteilung der 2D-Simulation in der letzten Thermoelementebene M4 mit der gemessenen verglichen. Der Vergleich zeigt für das Experiment einen stärkeren Temperaturabfall nach außen verglichen zur Simulation. Dieses kann verschiedene Gründe wie eine unbekannte Anströmung des Filters auf dem Motorprüfstand, eine fehlende Segmentierung und folglich Berücksichtigung des Klebers oder die fehlende 3D-Modellierung als Ursache haben. Am wahrscheinlichsten für die Abweichung scheint die fehlende Modellierung der Segmentierung zu sein. Ein Vergleich der Wärmeleitfähigkeit von SiC und dem Kleber – $k_{\mathrm{SiC}} \approx (50 - 300)\, k_{\mathrm{gl}}$ [82], abhängig vom Temperaturbereich – bestätigt diese Annahme. Der große Unterschied zwischen den Wärmeleitfähigkeiten führt zu einem schlechten Wärmeaustausch zwischen den einzelnen Segmenten und das wiederum zu einem verstärkten Auskühlen in den äußeren Bereichen des Filters.



(a) Simulation (b) Experiment

Abb. 5.27: *3D-Diagramm der Temperatur in Abhängigkeit von Radius und Zeit für Versuch 3 (Kalibrierung)*

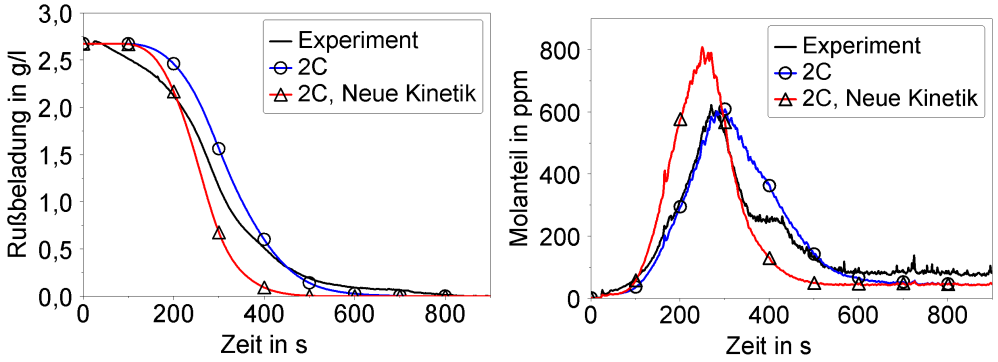
Inwiefern eine 3D-Modellierung, die Berücksichtigung des Klebers bzw. die Variation des äußeren Wärmeübergangs das gerechnete Temperaturprofil verbessern kann, ist im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht worden.

5.8 Wichtigkeit des Rußverlaufs

Um die Wichtigkeit der Betrachtung des Rußverlaufs hervorzuheben, wird eine Sensitivitätsanalyse bezüglich der kinetischen Parameter beispielhaft für Versuch 3 – die Kalibrierung – durchgeführt. Hierbei wird für die Variante **Neue Kinetik** die Aktivierungsenergie um 2 % herabgesetzt. Der Einfluss auf die Temperatur, den Druck, die Rußbeladung und den CO-Molanteil wird anhand von Abb. 5.28 diskutiert.

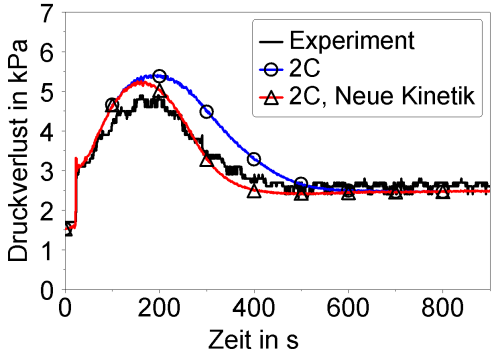
Ein Einfluss auf die Temperatur ist kaum vorhanden. Hingegen werden Rußbeladung und CO-Molanteil und dementsprechend auch der Druckverlust stark beeinflußt. Bedingt durch die 2 %-ige Verringerung der Aktivierungsenergie verläuft die Rußabbrandkurve deutlich steiler. Dies führt dazu, dass die vollständige Regeneration ca. 100 s früher erreicht wird. Ein Reaktionsmechanismus mit vergrößerten kinetischen Parametern scheint, betrachtet man lediglich Druckverlust und Temperatur, eine Verbesserung der Simulationsergebnisse zu bewirken.

Der Effekt des besseren Druckverlustverlaufs kann jedoch auch durch einen erhöhten Porenrußabbrand erreicht werden (siehe Abb. 5.22), durch den der Gesamtrußverlauf jedoch nur geringfügig verändert wird (siehe Abb. 5.21b). Es kommt sogar zu einer Verbesserung, im Gegensatz zum hier diskutierten Fall, was wiederum eine Bestätigung für ein 2-Komponenten-Modell mit erhöhtem Rußabbrand ist.

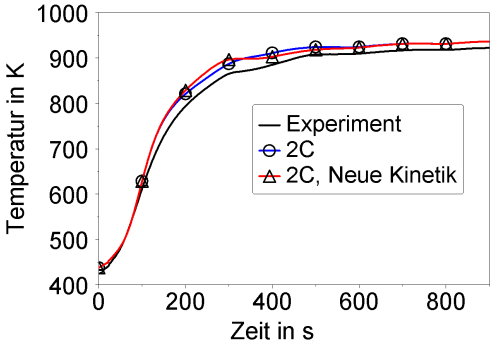


(a) Rußbeladung

(b) CO-Molanteil



(c) Druckverlust



(d) Temperatur

Abb. 5.28: *Sensitivitätsanalyse bezüglich der kinetischen Parameter des 2-Komponenten-Modells für Versuch 3 (Kalibrierung)*

Betrachtet man Ergebnisse anderer Forschungsgruppen, so fällt auf, dass hauptsächlich Temperatur- und Druckverlustverläufe verglichen werden [36,38,67,83]. Anhand dieser wird dann eine Aussage über die Güte der Simulationen bzw. der Modelle getroffen. Nur wenige Autoren haben ebenfalls versucht, simulierte mit experimentellen Rußverläufen zu vergleichen [66]. Bei diesen Arbeiten wurde zwar die Beladung unter

realen Bedingungen durchgeführt (Motor- oder Rollenprüfstand), die Regeneration dann aber meist, im Gegensatz zu dieser Arbeit, bei der der Filter auch unter realen Bedingungen auf einem Motorprüfstand regeneriert wurde, auf einem Komponentenprüfstand mit kontrollierbarer Temperaturführung des Reaktors unter Verwendung von Synthesegas. Mittels der hier durchgeführten Sensitivitätsanalyse kann jedoch festgehalten werden, dass eine Betrachtung der Temperaturen und Druckverluste nicht ausreicht. Eine detaillierte Untersuchung des Rußverlaufs und der Molanteile der Reaktionsprodukte ist somit unabdingbar und eine Anpassung simulierter an experimentelle (bilanzierte) Rußverläufe durch Variation der kinetischen Parameter somit zwingend notwendig.

5.9 Fazit

Durch eine Parametrierung des Druckverlustmodells und eine Anpassung der kinetischen Parameter lässt sich die Regeneration unterschiedlich beladener Filter bei verschiedensten Lastpunkten simulieren. Sowohl Druckverlust wie auch Rußverlauf und CO-Molanteil zeigen nur geringe Abweichungen zur Messung. Abweichungen, die bei ersten Simulationen im Bereich instationärer Druckverluste auftraten, konnten anhand von Modellerweiterungen beseitigt werden. Verbleibende Unterschiede zwischen den Verläufen der Simulation und der Messung eines Experiments konnten anhand einer Sensitivitäsanalyse in Verbindung mit 2D-Simulationen geklärt werden.

Als Kernaussage der Arbeit ist festzuhalten, dass ein Vergleich von Temperatur- und Druckverlustverläufen nicht ausreicht, um qualitative Aussagen über die Güte der Ergebnisse machen zu können. Eine Überwachung des Rußes während der Regeneration ist zwingend notwendig. Zudem dient der experimentelle Rußverlauf zur Anpassung der reaktionskinetischen Parameter.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Die Verwendung von CAE-Tools bei der Auslegung von Abgasnachbehandlungsanlagen gewinnt in der Automobilindustrie immer mehr an Bedeutung. Mit Hilfe dieser Werkzeuge lassen sich einzelne Phänomene untersuchen und verschiedenste Anlagenkonzepte bewerten, was auch bei der Planung gezielter Experimente hilft. Ziel dieser Arbeit ist es, die Weiterentwicklung des Simulationstools *IAV-Exhaust*® in Kooperation mit der IAV GmbH in Berlin voranzutreiben. Es wurden bereits bestehende Modelle chemisch validiert und auf den Ergebnissen aufbauend weitere Katalysatorvarianten bzw. Modellerweiterungen entwickelt und implementiert.

Die Untersuchungen beschränkten sich vor allem auf den Drei-Wege-Katalysator und den Dieselpartikelfilter. Es konnte gezeigt werden, dass durch eine Anpassung der kinetischen Parameter die Chemie der jeweiligen Katalysatorvariante (TWC) bzw. die Regeneration in unterschiedlichen Motorbetriebszuständen (DPF) gut wiedergegeben werden kann. Zudem wurde für die Validierung des Dieselpartikelfilters eine Methode zur Anpassung des Rußabbrands entwickelt, bei der der reale Rußverlauf während der Regeneration anhand einer Bilanz der C-Atome bestimmt wird. Dieses ermöglichte einen guten Vergleich von realem und gerechnetem Rußabbrand.

Die Anpassung der modellspezifischen Parameter erfolgte mit 1D-Simulationen. Getestet wurden die angepassten Modelle anschließend in anderen Lastpunkten des Motorkennfeldes (DPF) bzw. durch eine Simulation des NEFZ (TWC). Für gezieltere Untersuchungen, wie z. B. der inhomogenen Beladung des Dieselpartikelfilters, sind jedoch 2D-Simulationen notwendig. Um die Auswirkung verschiedener Einlauftrichter und somit Anströmungen untersuchen zu können, sollten die bestehenden 2D-Modelle auf 3D-Modelle erweitert werden. Außerdem kann mit Hilfe der 3D-Modellierung auch die segmentierte Bauweise von SiC-Partikelfiltern dargestellt werden. Ob dieses für eine schnelle Bewertung verschiedener Konzepte jedoch notwendig ist, ist zu bezweifeln.

Zur Verbesserung der Güte der Simulationen sollten weitere Teilmodelle besonders im Bereich der Reaktionskinetik implementiert werden. Für die monolithischen Katalysatoren sind hier vor allem die HC-Adsorption in der Kaltstartphase und die Erweiterung der Reaktionskinetik um „Water-Gas-Shift"- und „Steam-Reforming"-Reaktion zu nennen. Ferner sollten Reaktionsgleichungen anderer Autoren mit den bisher verwendeten verglichen werden.

Bei den wanddurchströmten Partikelfiltern sollte als nächster Schritt ein beschichteter Filter untersucht und modelliert werden, da bei Serienfahrzeugen diese Variante fast ausschließlich verwendet wird. Für die eigentliche Funktion des Partikelfilters – Zurückhalten der Partikel und Abbrand des Rußes – ist eine Modellierung der Beschichtung nicht zwingend notwendig, da diese vor allem für eine weitere Reduktion der THC sorgt bzw. die bei der Regeneration des Filters entstehenden CO zu CO_2 umsetzt. Ein beschichteter Filter könnte somit vereinfacht zuerst als Partikelfilter mit nachgeschaltetem Oxidationskatalysator modelliert werden. Eine Berücksichtigung der wiederholten Oxidation von NO zu NO_2 und folglich die Modellierung eines CCRT®-Systems ist auf diese Weise nicht möglich.

Das Hauptaugenmerk bei der Modellierung weiterer Katalysatorvarianten im Bereich der monolithischen Katalysatoren sollte vor allem auf den NO_x-Speicher- und SCR-Katalysator, für den schon Vorarbeiten geleistet wurden, gelegt werden. Eine Verwendung der beiden genannten Katalysatorvarianten für Serienfahrzeuge wird in den kommenden Jahren zwingend werden. Begründet werden kann dies mit der Einführung der Euro 6-Norm, durch die eine Nachbehandlung des Abgases bezüglich NO_x unausweichlich wird. Als weiterer Grund ist die hohe Absenkung des durchschnittlichen CO_2-Ausstosses zu nennen, der vorraussichtlich bis 2012 von derzeit 163 g/km auf 120 g/km gesenkt werden wird[1]. Die Einhaltung dieses Grenzwertes bedingt eine Reduktion des Kraftstoffverbrauchs, die im Ottomotorbereich über Magermotorkonzepte erreicht werden kann [84]. Aufgrund der mageren Betriebsweise kann der Drei-Wege-Katalysator dann jedoch lediglich als 2-Wege-Katalysator (reiner Oxidationskatalysator) betrieben werden, was eine Verwendung von NO_x-Speicher- oder SCR-Katalysatoren zur Reduktion der NO_x erforderlich machen wird.

[1] geplanter Rechtsrahmen der EU bis Mitte 2008, http://europa.eu, MEMO/07/46

Anhang A

Monolithische Katalysatoren

A.1 Parameter der Behinderungsterme der Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik

Die Faktoren der Behinderungsterme der Langmuir-Hinshelwood-Reaktionskinetik werden anhand eines Arrhenius-Ansatzes berechnet:

$$K_k = k_{0,k} \exp\left(-\frac{E_{\mathrm{A},k}}{RT}\right) \ . \tag{A.1}$$

Tabelle A.1 zeigt die Frequenzfaktoren und Aktivierungsenergien der Faktoren der Behinderungsterme.

Tab. A.1: *Parameter der Behinderungsterme*

Faktor Nr. Einheit	Frequenzfaktor $k_{0,k}$ -	Aktivierungsenergie $E_{A,k}/R$ K
Oxidation		
1	65,5	-961
2	2080	-361
3	3,98	-11611
4	$4,79 \cdot 10^5$	3733
Reduktion von Stickstoffmonoxid		
5a	$1,2028 \cdot 10^5$	-653,5

A.2 Kinetische Parameter der Drei-Wege-Katalysator-Varianten

Die Aktivierungsenergien stammen aus Beiträgen zum Thema der Modellierung monolithischer Katalysatoren anderer Autoren [54, 55], deren Reaktionsmodelle auch auf den Arbeiten von Voltz et al. [32] und Subramaniam und Varma [33] beruhen.

Tab. A.2: *$E_{A,k}/R$ der kinetischen Parameter*

	Aktivierungsenergie $\mathrm{E_{A,}}_k/R$				$\Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}$
Reaktion Nr.	Default	Faktor	Wert	Pontikakis [55]	-
-	K	-	K	K	J/mol
Oxidation					
1	16550	0,875	14481	14433	$8,03 \cdot 10^5$
2	14556	0,785	11426	11427	$1,926 \cdot 10^6$
3	12556	0,86	10798	10825	$2,83 \cdot 10^5$
4	12556	0,86	10798	10825	$2,42 \cdot 10^5$
Reduktion von Stickstoffmonoxid					
5	8771	1,33	11665	10825	$3,74 \cdot 10^5$
Oxidation von Stickstoffmonoxid					
5	11426,1	1	11426,1	-	$5,69 \cdot 10^4$

Tab. A.3: *$E_{A,k}/R$ der kinetischen Parameter für die Reaktionen des Sauerstoffspeichers*

Reaktion Nr.	Default	Faktor	Wert	Pontikakis [55]
-	K	-	K	K
Einlagern des Sauerstoffs				
6	10825	1	10825	10825
7	10825	1	10825	10825
Abgabe des Sauerstoffs				
8	10824	0,95	10283	10224
9	10824	0,95	10283	10224
10	10824	0,95	10283	10224
11	10824	0,95	10283	10224

Durch die Anpassung der kinetischen Parameter an stationäre Lastpunkte wurden die in Tab. A.4 und A.5 dargestellten Frequenzfaktoren ermittelt.

Tab. A.4: *Frequenzfaktoren der Anpassung der kinetischen Parameter*

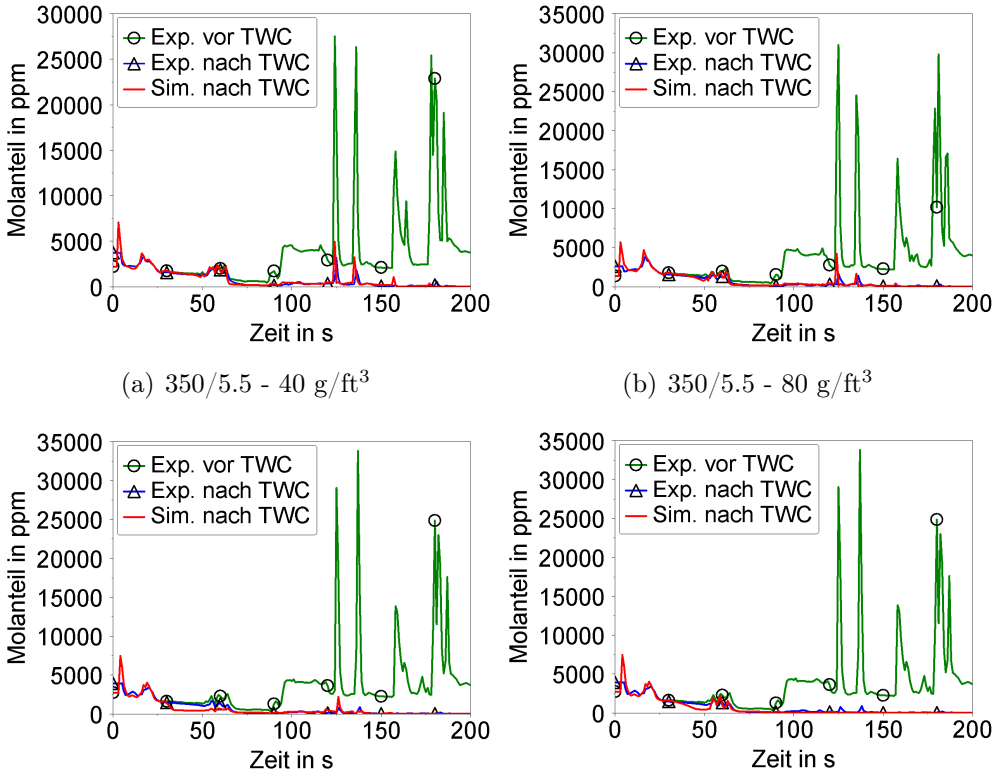
	350/5.5		900/2	
Reaktion Nr.	40 g/ft^3	80 g/ft^3	40 g/ft^3	80 g/ft^3
Oxidation				
1	$2,7 \cdot 10^{16}$	$6,0 \cdot 10^{16}$	$1,2 \cdot 10^{17}$	$3,0 \cdot 10^{16}$
2	$8,1 \cdot 10^{18}$	$1,8 \cdot 10^{19}$	$3,6 \cdot 10^{19}$	$9,0 \cdot 10^{18}$
3	$3,0 \cdot 10^{18}$	$3,0 \cdot 10^{17}$	$6,0 \cdot 10^{18}$	$3,0 \cdot 10^{18}$
4	$1,2 \cdot 10^{18}$	$1,2 \cdot 10^{18}$	$1,2 \cdot 10^{18}$	$1,2 \cdot 10^{18}$
Reduktion von Stickstoffmonoxid				
5	$8,0 \cdot 10^{15}$	$1,1 \cdot 10^{15}$	$2,4 \cdot 10^{15}$	$2,7 \cdot 10^{15}$

Tab. A.5: *Frequenzfaktoren der Anpassung der kinetischen Parameter für die Reaktionen des Sauerstoffspeichers*

	350/5.5		900/2	
Reaktion Nr.	40 g/ft^3	80 g/ft^3	40 g/ft^3	80 g/ft^3
Einlagern des Sauerstoffs				
6	$9,0 \cdot 10^{9}$	$9,0 \cdot 10^{9}$	$9,0 \cdot 10^{9}$	$1,2 \cdot 10^{9}$
7	$9,6 \cdot 10^{9}$	$9,6 \cdot 10^{9}$	$3,8 \cdot 10^{11}$	$1,9 \cdot 10^{10}$
Abgabe des Sauerstoffs				
8	$3,3 \cdot 10^{7}$	$4,9 \cdot 10^{7}$	$1,2 \cdot 10^{8}$	$1,6 \cdot 10^{8}$
9	$3,6 \cdot 10^{8}$	$3,0 \cdot 10^{8}$	$6,0 \cdot 10^{8}$	$1,8 \cdot 10^{9}$
10	$6,0 \cdot 10^{6}$	$4,5 \cdot 10^{7}$	$4,5 \cdot 10^{7}$	$1,2 \cdot 10^{8}$
11	$3,3 \cdot 10^{8}$	$3,3 \cdot 10^{8}$	$3,3 \cdot 10^{8}$	$3,3 \cdot 10^{8}$

A.3 Molanteile der NEFZ-Simulationen

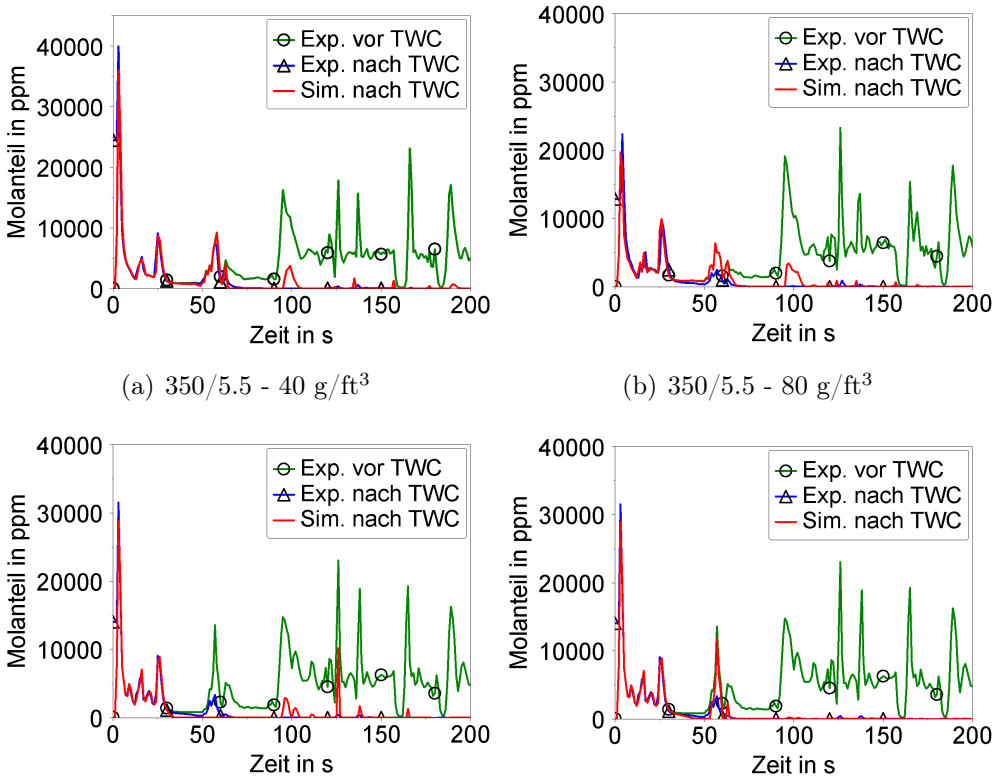
Die Beutelergebnisse aller Komponenten, vor allem jedoch von THC und CO, zeigen eine gute Übereinstimmung (siehe Kap. 4.6). Diese Ergebnisse werden durch die Betrachtung der Molanteile in den ersten 200 Sekunden bestätigt, in denen der Light-Off aller Komponenten gut getroffen wird. Darüber hinaus werden sogar einzelne Durchbrüche nach dem Light-Off, die durch die Verwendung kürzerer Katalysatoren gezielt hervorgerufen werden, durch die Reaktionskinetik wiedergegeben (Abb. A.1).



(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. A.1: *THC – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs*

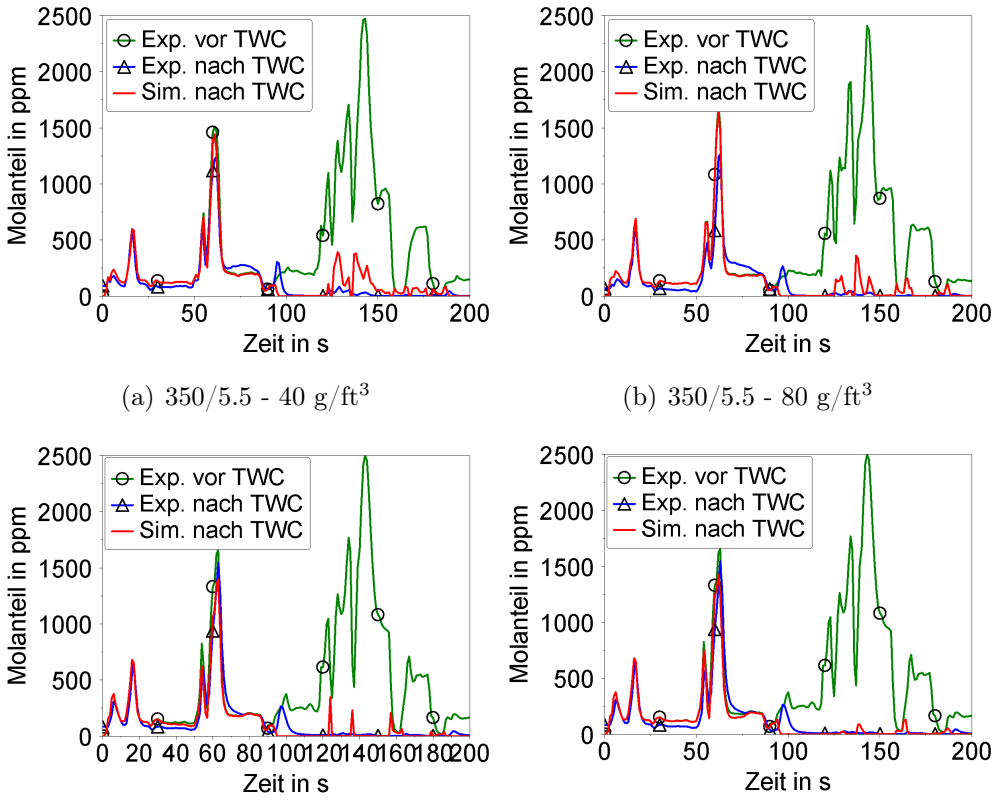


(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. A.2: *CO – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs*

Die größten Abweichungen sind jedoch deutlich beim NO zu verzeichnen. Daher ist es nicht verwunderlich, dass auch bei den kumulierten Massen die Abweichungen am größten sind.



(a) 350/5.5 - 40 g/ft^3 (b) 350/5.5 - 80 g/ft^3

(c) 900/2 - 40 g/ft^3 (d) 900/2 - 80 g/ft^3

Abb. A.3: *NO – Vergleich der Molanteile des NEFZ im Bereich des Light-Offs*

A.4 Daten der verwendeten Drei-Wege-Katalysatoren

Tab. A.6: *Katalysatorvarianten*

	Einheit	350/5.5		900/2	
		A_1	A_2	B_1	B_1
CPSI	Zellen/in^2	350	350	900	900
Wandstärke	mil	5,5	5,5	2	2
PML	g/ft^3	40	80	40	80
GSA unbesch.	m^2/l	2,634	2,634	4,440	4,440
GSA besch.	m^2/l	2,535	2,535	4,161	4,161
OFA unbesch.	-	80,5	80,5	88,3	88,3
OFA besch.	-	74	74	77,6	77,6
PML/GSA	(g m^3)/(ft^3 m^2)	15,8	31,6	9,6	19,2

A.5 Vergleich der Reaktionsgeschwindigkeiten der Drei-Wege-Katalysator-Varianten

Ein Vergleich der für den Umsatz repräsentativen Frequenzfaktoren führt zu konstanten Faktoren, die anhand der Gleichung $\hat{k}_{0,j} = C_{j,k}\,\hat{k}_{0,k}$ für den jeweiligen Variantenvergleich berechnet werden können.

Tabelle A.7 zeigt die für die Reaktionen 1 bis 11 ermittelten Faktoren.

Tab. A.7: *Vergleich der Reaktionsgeschwindigkeiten der Drei-Wege-Katalysator-Varianten*

Variante	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
A1 → A2	2,2	2,2	0,1	1	0,14	1	1	1,6	0,84	7,33	1
A1 → B1	7,35	7,14	3,3	1,7	0,5	1,7	66,7	5,8	2,75	12,7	1,7
A1 → B2	1,76	1,76	1,6	1,7	0,55	0,2	3,3	8,3	8,24	33,3	1,7
A2 → B1	3,3	3,3	32,9	1,7	3,7	1,7	66,7	3,7	3,3	1,7	1,7
A2 → B2	0,8	0,8	15,8	1,7	4,1	0,2	3,3	5,2	9,9	4,55	1,7
B1 → B2	0,24	0,25	0,5	1	1,1	0,1	0,05	1,4	3	2,6	1

A.6 Güte der Rechnungs-/Messungsvergleiche der Drei-Wege-Katalysator-Varianten

Tabelle A.8 zeigt die Güte der Simulation, die aus der Differenz zwischen Messung und Simulation der kumulierten Massen am Austritt bezogen auf die kumulierte Masse am Eintritt berechnet wird.

Tab. A.8: *Prozentuale Abweichung zwischen Messung und Simulation*

Katalysatorvariante	THC %	CO %	NO %	O_2 %
Versuchsanlage A				
350/5.5 - 40 g/ft^3	4,0	0,9	6,0	4,4
Versuchsanlage B				
350/5.5 - 40 g/ft^3	4,4	0,6	6,1	5,1
350/5.5 - 80 g/ft^3	2,4	1,2	3,4	5,2
900/2 - 40 g/ft^3	1,0	0,5	2,0	6,4
900/2 - 40 g/ft^3	1,1	0,2	0,8	3,0

A.7 Reaktionsenthalpien der Sauerstoffspeicherreaktionen

A.7.1 Sauerstoffabgabe an Methan – Reaktion 8

$$
\begin{aligned}
8\,\mathrm{CeO_2} + \mathrm{CH_4} &\rightharpoonup 4\ (2\,\mathrm{CeO_2}) + \mathrm{CH_4} \\
&\rightharpoonup 4\left(\mathrm{Ce_2O_3} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) + \mathrm{CH_4} \\
&\rightharpoonup 4\,\mathrm{Ce_2O_3} + (\mathrm{CH_4} + 2\,\mathrm{O_2}) - 4\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup 4\,\mathrm{Ce_2O_3} + \mathrm{CO_2} + 2\,\mathrm{H_2O} - 4\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} + \Delta\tilde{h}_1^{\mathrm{R}} \\
\Rightarrow \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{8\,\mathrm{CeO_2}+\mathrm{CH_4}} = \Delta\tilde{h}_8^{\mathrm{R}} &= \Delta\tilde{h}_1^{\mathrm{R}} - 4\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}
\end{aligned}
\tag{A.2}
$$

A.7.2 Sauerstoffabgabe an Propen – Reaktion 9

$$
\begin{aligned}
18\,\mathrm{CeO_2} + \mathrm{C_3H_6} &\rightharpoonup 9\ (2\,\mathrm{CeO_2}) + \mathrm{C_3H_6} \\
&\rightharpoonup 9\left(\mathrm{Ce_2O_3} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) + \mathrm{C_3H_6} \\
&\rightharpoonup 9\,\mathrm{Ce_2O_3} + \left(\mathrm{C_3H_6} + \frac{9}{2}\,\mathrm{O_2}\right) - 9\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup 9\,\mathrm{Ce_2O_3} + 3\,\mathrm{CO_2} + 3\,\mathrm{H_2O} + \Delta\tilde{h}_2^{\mathrm{R}} - 9\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
\Rightarrow \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{18\,\mathrm{CeO_2}+\mathrm{C_3H_6}} = \Delta\tilde{h}_9^{\mathrm{R}} &= \Delta\tilde{h}_2^{\mathrm{R}} - 9\,\Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}
\end{aligned}
\tag{A.3}
$$

A.7.3 Sauerstoffabgabe an Kohlenstoffmonoxid – Reaktion 10

$$
\begin{aligned}
2\,\mathrm{CeO_2} + \mathrm{CO} &\rightharpoonup (2\,\mathrm{CeO_2}) + \mathrm{CO} \\
&\rightharpoonup \left(\mathrm{Ce_2O_3} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) + \mathrm{CO} \\
&\rightharpoonup \mathrm{Ce_2O_3} + \left(\mathrm{CO} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2}\right) - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup \mathrm{Ce_2O_3} + \mathrm{CO_2} + \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
\Rightarrow \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{2\,\mathrm{CeO_2}+\mathrm{CO}} = \Delta\tilde{h}_{10}^{\mathrm{R}} &= \Delta\tilde{h}_3^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}
\end{aligned}
\tag{A.4}
$$

A.7.4 Sauerstoffabgabe an Wasserstoff – Reaktion 11

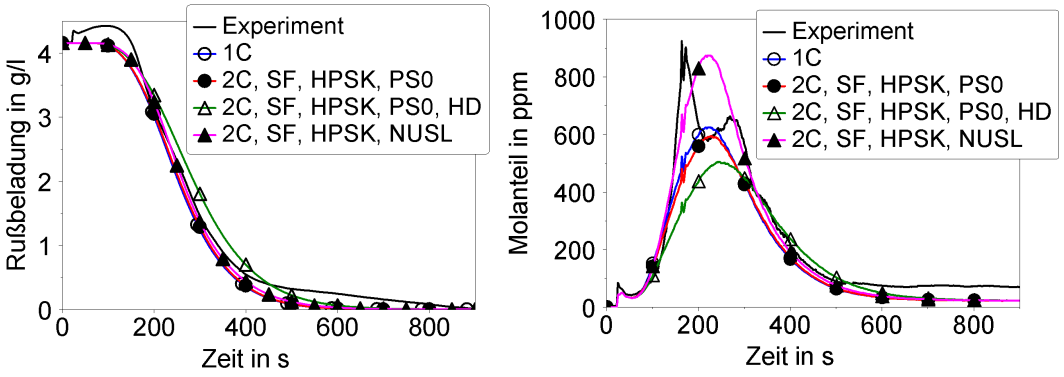
$$
\begin{aligned}
2\,\mathrm{CeO_2} + \mathrm{H_2} &\rightharpoonup (2\,\mathrm{CeO_2}) + \mathrm{H_2} \\
&\rightharpoonup \left(\mathrm{Ce_2O_3} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}\right) + \mathrm{H_2} \\
&\rightharpoonup \mathrm{Ce_2O_3} + \left(\mathrm{H_2} + \frac{1}{2}\,\mathrm{O_2}\right) - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
&\rightharpoonup \mathrm{Ce_2O_3} + \mathrm{H_2O} + \Delta\tilde{h}_4^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}} \\
\Rightarrow \Delta\tilde{h}^{\mathrm{R}}_{2\,\mathrm{CeO_2}+\mathrm{H_2}} &= \Delta\tilde{h}_{11}^{\mathrm{R}} = \Delta\tilde{h}_4^{\mathrm{R}} - \Delta\tilde{h}_6^{\mathrm{R}}
\end{aligned}
\tag{A.5}
$$

Anhang B

Dieselpartikelfilter

B.1 Teilregenerierter Filter

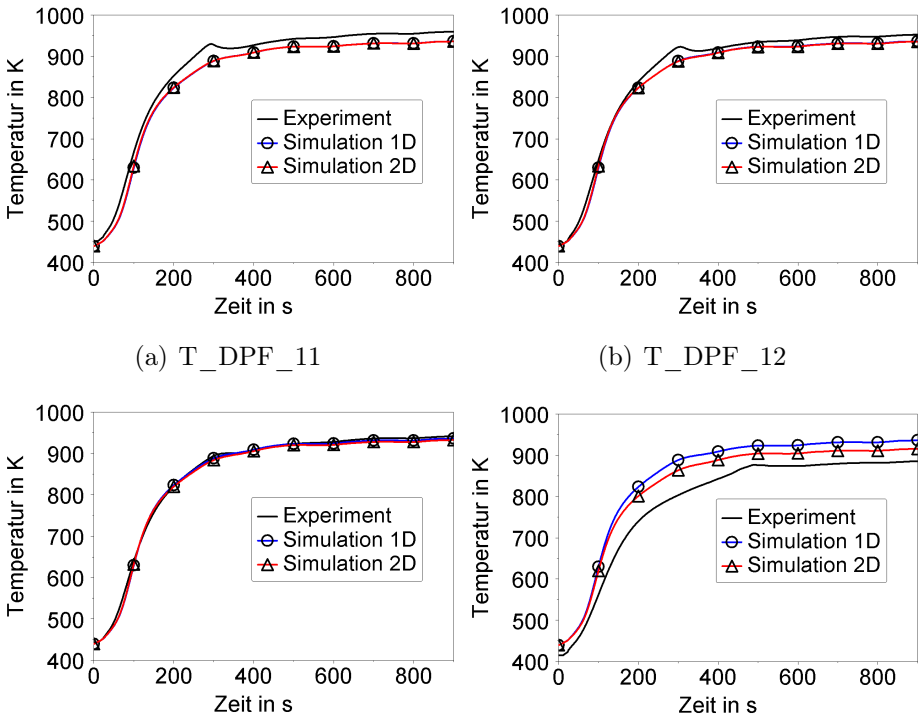
Die folgende Abbildung zeigt den Rußverlauf und die Molanteile der Ergebnisse zum teilregenerierten Versuch aus Kap. 5.7.



(a) Rußbeladung (b) CO-Molanteil

Abb. B.1: *Rußverlauf und CO-Molanteile der Studie zum teilregenerierten Versuch 9*

B.2 Temperaturen der Ebene M4 einer 2D-Simulation



(a) T_DPF_11 (b) T_DPF_12

(c) T_DPF_13 (d) T_DPF_15

Abb. B.2: *Vergleich der Temperaturen in der letzten Thermoelementebene M4 der 1D-/2D-Simulation für Versuch 3, 2-Komponenten-Modell, höherer Porenrußabbrand*

Anhang C

Stoffwerte

C.1 Abgas

Die Polynome für die Dichte, die Wärme- und die Temperaturleitfähigkeit und die kinematische Viskosität in Abhängigkeit von der Temperatur wurden anhand von Stoffdaten für Luft des VDI-Wärmeatlas [48] erstellt.

Tab. C.1: *Stoffwerte des Abgases*

Stoffwert	Bestimmungsgleichung
ρ in kg/m^3	$\rho(T) = \frac{345}{T}$
k in W/(m K)	$k(T) = 1,1 \cdot 10^{-2} + 0,56 \cdot 10^{-4}\, T$
α in m^2/s	$\alpha(T) = -1,65 \cdot 10^{-5} + 1,035 \cdot 10^{-7}\, T + 8,36 \cdot 10^{-11}\, T^2$
ν in m^2/s	$\nu(T) = -8,267 \cdot 10^{-6} + 5,874 \cdot 10^{-8}\, T + 7,38 \cdot 10^{-11}\, T^2$

Für die spezifische Wärmekapazität wird ein Polynom in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Verbrennungsluftverhältnis λ verwendet [85], dass aus spezifischen Wärmekapazitäten nach Justi [86] entwickelt worden ist.

$$c_\mathrm{p}\,(T,\lambda) = 144,7 \left(-3 \left(0,0975 + \frac{0,0485}{\lambda^{0,75}} \right) \frac{(T - 273,15)^2}{10^6} + 2 \left(7,768 + \frac{3,36}{\lambda^{0,8}} \right) \frac{(T - 273,15)}{10^4} + \left(4,896 + \frac{0,464}{\lambda^{0,93}} \right) \right) + 287,7 \quad \text{(C.1)}$$

C.2 Konverter

Tab. C.2: *Stoffwerte der Konverter*

Stoffwert	TWC / DOC (Cordierit)	DPF (SiC)	Isolierung	Schale	
				1.0305	1.4301
ρ in kg/m^3	1662	1674	–	7850	7900
k in W/(m K)	2	30	0,05 - 0,15	Pol. 2. Gr.	Pol. 2. Gr.
c_p in J/(kg K)	980	1100	–	690	Pol. 2. Gr.

Bei der Schale mit der Werkstoffnummer 1.0305 handelt es sich um den warmfesten Stahl mit der Bezeichnung St 35.8. Die Werkstoffnummer 1.4301 kennzeichnet einen nichtrostenden und säurebeständigen Stahl mit der Bezeichnung X 5 CrNi 18-10. Die Daten der Schale stammen aus dem VDI Wärmeatlas [48]. Sind Stoffwerte bei verschiedenen Temperaturen vorhanden, wird ein Polynom 2. Grades durch diese Daten gelegt. Der Gültigkeitsbereich der Polynome liegt zwischen 293 und 1073 bzw. 1273 K.

Die Dichte des SiC-Filters bzw. des monolithischen Katalysators berechnet sich mit der Rohdichte von SiC bzw. Cordierit (3100 kg/m^3 bzw. 2510 kg/m^3) und der jeweiligen Porosität des Werkstoffs. Der in dieser Arbeit verwendete Dieselpartikelfilter hat eine Porosität des Siliziumkarbids (SiC) von 46 %. Monolithische Katalysatoren aus Cordierit weisen je nach Zelldichte eine Porosität von 27 bis 35 % auf [43].

$$\rho_\mathrm{cat} = \rho_\mathrm{bulk}\ (1 - \epsilon) \tag{C.2}$$

Da der Washcoat eine höhere Porosität hat als das Substrat, wird die Dichte mit 0,7 multipliziert. Als Beschichtungsdicke wird ein typischer Wert von 25 μm verwendet.

Literaturreferenzen

[1] Pucher, E.; Brandt, S.; Siemund, S.; Stiebels, S.; Dahle, U.; Bergmann, A.; Scherm, P.; Beutel, T.; Mayer, A.; Burtscher, H.; Kasper, M.; Punke, A.: Abgasemissionen. In: van Basshuysen, R. (Hrsg.); Schäfer, F. (Hrsg.): *Handbuch Verbrennungsmotor*. 2. Auflage. Braunschweig: Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, 2002, ISBN 3-528-13933-1

[2] Eastwood, P.: *Critical Topics in Exhaust Gas Aftertreatment*. Baldock, Hertfordshire, England: Research Studies Press Ltd., 2000, ISBN 0-86380-242-7

[3] Metz, N.: Entwicklung der Luftqualität, Abgasemissionen und der Gesetzgebung inklusive der Testzyklen in Europa. In: *2. Dresdner Motorenkolloquium*. Dresden, 1997, 23

[4] Rodt, S.: Future Diesel: Exhaust gas legislations for passenger cars, light-duty commercial vehicles, and heavy duty vehicles – Updating of limit values for diesel vehicles – / Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt). Germany. 2003. – Forschungsbericht, http://www.umweltbundesamt.de, 25.3.2006

[5] EU: Strengere Emissionsgrenzwerte für Kraftfahrzeuge nach Verabschiedung von Euro 5 und Euro 6 durch EP / Europäische Union. 2006. – Pressemitteilung: IP/06/1800, http://europa.eu, 13.2.2007

[6] Kraftfahrtbundesamt: Bestand an Personenkraftwagen nach Kraftstoffarten. http://www.kba.de, 13.2.2006

[7] Wanker, R.; Granter, H.; Bachler, G.; Rabenstein, G.; Ennemoser, A.; Tatschl, R.; Bollig, M.: New Physical and Chemical Models for the CFD Simulation of Exhaust Gas Lines: A Generic Approach. *SAE Technical Paper Series* **2002-01-0066** (2002), 11

[8] Peters, B. J.; Wanker, R.; Münzer, A.; Wurzenberger, J. C.: Integrated 1D to 3D Simulation Workflow of Exhaust Aftertreatment Devices. *SAE Technical Paper Series* **2004-01-1132** (2004), 13

[9] Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Catalytic automotive exhaust aftertreatment. *Progress in Energy and Combustion Science* **23** (1) (1997), 1–39

[10] Muraki, H.; Zhang, G.: Design of advanced automotive exhaust catalysts. *Catalysis Today* **63** (2-4) (2000), 337–345

[11] Ball, D. J.; Nunan, J. G.; Blosser, P.; Wilson, J.; Mitchell, G.; Davis, S.; Zammit, M.: FlexMetal Catalyst Technologies. *SAE Technical Paper Series* **2005-01-1111** (2005), 13

[12] Ozawa, M.: Role of cerium-zirconium mixed oxides as catalysts for car pollution: A short review. *Journal of Alloys and Compounds* **277** (1998), 886–890

[13] Golunski, S. E.; Hatcher, H. A.; Rajaram, R. R.; Truex, T. J.: Origins of Low-Temperature 3-Way Activity in Pt/CeO2. *Applied Catalysis B-Environmental* **5** (4) (1995), 367–376

[14] Vidal, H.; Kaspar, J.; Pijolat, M.; Colon, G.; Bernal, S.; Cordon, A.; Perrichon, V.; Fally, F.: Redox behavior of CeO_2-ZrO_2 mixed oxides - II. Influence of redox treatments on low surface area catalysts. *Applied Catalysis B-Environmental* **30** (1-2) (2001), 75–85

[15] Loong, C. K.; Ozawa, M.: The role of rare earth dopants in nanophase zirconia catalysts for automotive emission control. *Journal of Alloys and Compounds* **303** (2000), 60–65

[16] Depcik, C.; Assanis, D.: One-dimensional automotive catalyst modelling. *Progress in Energy and Combustion Science* **31** (2) (2005), 308–369

[17] Koltsakis, G. C.; Konstantinidis, P. A.; Stamatelos, A. M.: Development and application range of mathematical models for 3-way catalytic converters. *Applied Catalysis B-Environmental* **12** (2-3) (1997), 161–191

[18] Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Modeling dynamic phenomena in 3-way catalytic converters. *Chemical Engineering Science* **54** (20) (1999), 4567–4578

[19] Pontikakis, G. N.; Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.; Noirot, R.; Agliany, Y.; Colas, H.; Versaevel, P.; Bourgeois, C.: Experimental and modeling study on zeolite catalysts for diesel engines. *Topics in Catalysis* **16** (1-4) (2001), 329–335

[20] Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Storage of Chemical Species in Emission Control Systems: The Role of Mathematical Modeling. In: *GPC 2001 Global Powertrain Congress*. Detroit, MI, U.S.A., 2001

[21] Wang, Y.; Raman, S.; Grizzle, J. S.: Dynamic Modeling of a Lean NOx Trap for Lean Burn Engine Control. In: *American Control Conference*. San Diego, CA, U.S.A., 1999

[22] Daw, C. S.; Chakravarthy, K.; Lenox, K. E.: A simple model for lean NOx adsorber catalysts. In: *Third Joint Meeting of the U.S. Sections of the Combustion Institute*. Chicago, IL, U.S.A., 2001

[23] Tronconi, E.; Cavanna, A.; Forzatti, P.: Unsteady analysis of NO reduction over selective catalytic reduction-De-NO_x monolith catalysts. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **37** (6) (1998), 2341–2349

[24] Tronconi, E.; Nova, I.; Ciardelli, C.; Chatterjee, D.; Bandl-Konrad, B.; Burkhardt, T.: Modelling of an SCR catalytic converter for diesel exhaust after treatment: Dynamic effects at low temperature. *Catalysis Today* **105** (3-4) (2005), 529–536

[25] Koebel, M.; Elsener, M.; Marti, T.: NO_x-Reduction in Diesel Exhaust Gas with Urea and Selective Catalytic Reduction. *Combustion Science and Technology* **121** (1996), 85–102

[26] Koebel, M.; Elsener, M.: Selective Catalytic Reduction of NO over Commercial $DeNO_x$ Catalysts: Comparison of the Measured and Calculated Performance. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **37** (2) (1998), 327–335

[27] Koebel, M.; Elsener, M.: Selective catalytic reduction of NO over commercial $DeNO_x$-catalysts: experimental determination of kinetic and thermodynamic parameters. *Chemical Engineering Science* **53** (4) (1998), 657–669

[28] Kleemann, M.; Elsener, M.; Koebel, M.; Wokaun, A.: Hydrolysis of Isocyanic Acid on SCR Catalysts. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **39** (11) (2000), 4120–4126

[29] Koebel, M.; Elsener, M.; Madia, G.: Reaction Pathways in the Selective Catalytic Reduction Process with NO and NO_2 at Low Temperatures. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **40** (1) (2001), 52–59

[30] Koebel, M.; Madia, G.; Elsener, M.: Selective catalytic reduction of NO and NO_2 at low temperatures. *Catalysis Today* **73** (3-4) (2002), 239–247

[31] Madia, G.; Koebel, M.; Elsener, M.; Wokaun, A.: Side Reactions in the Selective Catalytic Reduction of NO_x with Various NO_2 Fractions. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **41** (16) (2002), 4008–4015

[32] Voltz, S. E.; Morgan, C. R.; Liederma.D; Jacob, S. M.: Kinetic Study of Carbon-Monoxide and Propylene Oxidation on Platinum Catalysts. *Industrial & Engineering Chemistry Product Research and Development* **12** (4) (1973), 294–301

[33] Subramaniam, B.; Varma, A.: Reaction Kinetics on a commercial Three-Way Catalyst: The CO-NO-O_2-H_2O System. *Industrial & Engineering Chemistry Product Research and Development* **24** (1985), 512–516

[34] Bissett, E. J.: Mathematical Model of the Thermal Regeneration of a Wall-Flow Monolith Diesel Particulate Filter. *Chemical Engineering Science* **39** (7-8) (1984), 1233–1244

[35] Bissett, E. J.; Shadman, F.: Thermal Regeneration of Diesel-Particulate Monolithic Filters. *AIChE Journal* **31** (5) (1985), 753–758

[36] Law, M. C.; Clarke, A.; Garner, C. P.: A diesel particulate filter regeneration model with a multi-step chemical reaction scheme. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers Part D-Journal of Automobile Engineering* **219** (2005), 215–226

[37] Bogdanic, M.; Behrendt, F.; Mertins, F.; Brust, S.; Heimlich, F.: Soot Monitoring for Calibration and Validation of a 1D/2D-Simulation Tool for Diesel Particulate Filters. *SAE Technical Paper Series* **2006-01-3255** (2006), 13

[38] Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Modeling thermal regeneration of wall-flow diesel particulate traps. *AIChE Journal* **42** (6) (1996), 1662–1672

[39] Konstandopoulos, A. G.; Skaperdas, E.; Warren, J.; Allansson, R.: Optimized Filter Design and Selection Criteria for Continuously Regenerating Traps. *SAE Technical Paper Series* **1999-01-0468** (1999), 183–192

[40] Konstandopoulos, A. G.; Kostoglou, M.; E., S.; Papaioannou, E.; Zarvalis, D.; Kladopoulou, E.: Fundamental Studies of Diesel Particulate Filters: Transient Loading, Regeneration and Aging. *SAE Technical Paper Series* **2000-01-1016** (2000), 189–211

[41] Bogdanic, M.: Thermodynamische Validierung eines Modells zur Auslegung von Autoabgasanlagen. Technische Universität Berlin, Berlin, Deutschland, Diplom, 2003

[42] Hauber, T.: Vom beschichteten Monolithen zum Abgasreinigungssystem. In: Hagelüken, C. (Hrsg.): *Autoabgaskatalysatoren* Bd. 612. Renningen: expert verlag GmbH, 2001, ISBN 3-8169-1932-4

[43] Brenscheidt, T.: Katalysatorträger: Ein Überblick. In: Hagelüken, C. (Hrsg.): *Autoabgaskatalysatoren* Bd. 612. Renningen: expert verlag GmbH, 2001, ISBN 3-8169-1932-4

[44] Gieshoff, J.: Der Autoabgaskatalysator: Zusammensetzung, Herstellung und Charakterisierung. In: Hagelüken, C. (Hrsg.): *Autobagaskatalysatoren* Bd. 612. Renningen: expert verlag GmbH, 2001, ISBN 3-8169-1932-4

[45] DieselNet Technology Guide: http://www.dieselnet.com, 19.4.2005

[46] Müller, I.: Grundzüge der Thermodynamik mit historischen Anmerkungen. 3. Auflage. Berlin: Springer Verlag GmbH, 2001, ISBN 3-540-42210-2

[47] Baehr, H. D.; Stephan, K.: Wärme- und Stoffübertragung. 2. Auflage. Berlin: Springer Verlag GmbH, 1996, ISBN 3-540-60374-3

[48] VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen: VDI-Wärmeatlas. 10. Auflage. Berlin: Springer Verlag GmbH, 2006, ISBN 3-540-25504-4

[49] Perry, R. H.; Green, D. W.; Maloney, J. O.: Perry's Chemical Engineers' Handbook. 6th Edition. New York: McGraw-Hill, 1984, ISBN 0-07-049479-7

[50] Görsmann, C.: Catalytic Coatings for Active and Passive Diesel Particulate Filter Regeneration. *Chemical Monthly* **136** (2005), 91–105

[51] Groppi, G.; Tronconi, E.: Continuous vs discrete models of nonadiabatic monolith catalysts. *AIChE Journal* **42** (8) (1996), 2382–2387

[52] Kolaczkowski, S. T.; Worth, D. J.: Modelling channel interactions in a non-adiabatic multichannel catalytic combustion reactor. *Catalysis Today* **26** (1995), 275–282

[53] Koltsakis, G. C.; Tsinoglou, D. N.: Thermal Response of Close-Coupled Catalysts During Light-Off. *SAE Technical Paper Series* **2003-01-1876** (2003), 1–14

[54] Dubien, C.; Schweich, D.; Mabilon, G.; Martin, B.; Prigent, M.: Three-way catalytic converter modelling: fast- and slow-oxidizing hydrocarbons, inhibiting species, and steam-reforming reaction. *Chemical Engineering Science* **53** (3) (1998), 471–481

[55] Pontikakis, G. N.: Modeling, Reaction Schemes and Kinetic Parameter Estimation in Automotive Catalytic Converters and Diesel Particulate Filters. University of Thessaly, Volos, Greece, Dissertation, 2003

[56] Konstantas, G. S.; Stamatelos, A. M.: Computer-Aided Design Optimization of Catalytic Exhaust Treatment Systems for Gasoline-Powered Cars. In: *Design Optimization International Conference*. Athen, Greece, 2004, 13

[57] Pontikakis, G. N.; Konstantas, G. S.; Stamatelos, A. M.: Three-way catalytic converter modeling as a modern engineering design tool. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power-Transactions of the ASME* **126** (4) (2004), 906–923

[58] Pischinger, S. (Hrsg.): Verbrennungsmotoren. Bd. 2. 21. Auflage. Aachen, 2000

[59] Mayer, A.: Particulate-Filter-Systems, Particle-Traps / Diesel Particulate Filter Manufacturers Task Force (Arbeitskreis Partikel-Filter-Systemhersteller). 2003. – encyclopaedic article, http://www.akpf.org, 11.3.2004

[60] Stratakis, G. A.: Experimental Investigation of Catalytic Soot Oxidation and Pressure Drop Characteristics in Wall-Flow Diesel Particulate Filters. University of Thessaly, Volos, Greece, Dissertation, 2004

[61] Schäfer-Sindlinger, A.; Vogt, C. D.; Hamanaka, T.; Hashimoto, S.; Matsubara, R.: Einfluß des Filtermaterials auf katalysierte Filter. In: Steinmetz, E. (Hrsg.): *Haus der Technik Fachbuch* Bd. 36. Renningen: expert verlag GmbH, 2004, ISBN 3-8169-2430-1

[62] Law, M. C.; Clarke, A.; Garner, C. P.: The effects of soot properties on the regeneration behaviour of wall-flow diesel particulate filters. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers Part D-Journal of Automobile Engineering* **218** (2004), 1513–1524

[63] Otto, K.; Sieg, M. H.; Zinbo, M.; Bartosiewicz, L.: The Oxidation of Soot Deposits from Diesel Engines. *SAE Technical Paper Series* **800336** (1980), 1399–1411

[64] Pontikakis, G. N.; Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Dynamic filtration modeling in foam filters for diesel exhaust. *Chemical Engineering Communications* **188** (2001), 21–46

[65] Haralampous, O. A.; Koltsakis, G. C.: Intra-layer temperature gradients during regeneration of diesel particulate filters. *Chemical Engineering Science* **57** (13) (2002), 2345–2355

[66] Versaevel, P.; Colas, H.; Rigaudeau, C.; Noirot, R.; Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Some Empirical Observations on Diesel Particulate Filter Modeling and Comparison Between Simulations and Experiments. *SAE Technical Paper Series* **2000-01-477** (2000), 11

[67] Koltsakis, G. C.; Stamatelos, A. M.: Modes of catalytic regeneration in diesel particulate filters. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **36** (10) (1997), 4155–4165

[68] Ohno, K.; Hong, S.; Sato, H.; Gege, I.; Schulz, R.: Verbesserung der Aschespeicherfähigkeit bei Dieselpartikelfiltern. In: Steinmetz, E. (Hrsg.): *Haus der Technik Fachbuch* Bd. 36. Renningen: expert verlag GmbH, 2004, ISBN 3-8169-2430-1

[69] Scheidegger, A. E.: The physics of flow through porous media. 3rd Edition. Toronto: University of Toronto Press, 1974, ISBN 0-8020-1849-1

[70] Stanmore, B. R.; Brilhac, J. F.; Gilot, P.: The oxidation of soot: a review of experiments, mechanisms and models. *Carbon* **39** (15) (2001), 2247–2268

[71] Bird, R. B.; Stewart, W. E.; Lightfoot, E. N.: Transport Phenomena. 2nd Edition. New York: John Wiley & Sons, 2002, ISBN 0-471-41077-2

[72] Pulkrabek, W. W.; Ibele, W. E.: The Effect of Temperature on the Permeability of a Porous Material. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **30** (6) (1987), 1103–1109

[73] Friedlander, S. K.: Smoke, dust, and haze. New York: John Wiley & Sons, 1977, ISBN 0-471-01468-0

[74] Lee, K. W.; Reed, L. D.; Gieseke, J. A.: Pressure drop across packed beds in the low Knudsen number regime. *Journal of Aersol Science* **9** (1978), 557–565

[75] Kraume, M.: Transportvorgänge in der Verfahrenstechnik. Berlin: Springer Verlag GmbH, 2004, ISBN 3-540-40105-9

[76] Siemund, S.; Leclerc, J. P.; Schweich, D.; Prigent, M.; Castagna, F.: Three-way monolithic converter: Simulations versus experiments. *Chemical Engineering Science* **51** (15) (1996), 3709–3720

[77] Balenovic, M.: Modeling and Model-Based Control of a Three-Way Catalytic Converter. Eindhoven University of Technology, Eindhoven, Netherlands, Dissertation, 2002

[78] Lassi, U.: Deactivation Correlations of Pd/Rh Three-Way Catalysts Designed For Euro IV Emission Limits. University of Oulu, Oulu, Finland, Dissertation, 2003

[79] Su, D. S.; Jentoft, R. E.; Muller, J. O.; Rothe, D.; Jacob, E.; Simpson, C. D.; Tomovic, Z.; Mullen, K.; Messerer, A.; Poschl, U.; Niessner, R.; Schlogl, R.: Microstructure and oxidation behaviour of Euro IV diesel engine soot: a comparative study with synthetic model soot substances. *Catalysis Today* **90** (1-2) (2004), 127–132

[80] Vander Wal, R. L.; Tomasek, A. J.: Soot oxidation: dependence upon initial nanostructure. *Combustion and Flame* **134** (2003), 1–9

[81] Ahlström, A. F.; Odenbrand, C. U. I.: Combustion Characteristics of Soot Deposits from Diesel-Engines. *Carbon* **27** (3) (1989), 475–483

[82] Pontikakis, G.; Stamatelos, A.: Three-Dimensional Catalytic Regeneration Modeling of SiC Diesel Particulate Filters. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power* **128** (2006), 421–433

[83] Konstandopoulos, A. G.; Kostoglou, M.: Reciprocating Flow Regeneration of Soot Filters. *Combustion and Flame* **121** (2000), 488–500

[84] Pischinger, F.; Wolters, P.: Antriebe: Ottomotor - Teil 2. In: Braess, H.-H. (Hrsg.); Seiffert, U. (Hrsg.): *Vieweg Handbuch Kraftfahrzeugtechnik*. Braunschweig: Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, 2000, ISBN 3-528-03114-X

[85] Pucher, H.: Vergleich der programmierten Ladungswechselrechnung für Viertaktdieselmotoren nach der Charakteristikentheorie und der Füll- und Entleermethode. Technische Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig, Braunschweig, Deutschland, Dissertation, 1975

[86] Justi, E.: Spezifische Wärme Enthalpie, Entropie und Dissoziation technischer Gase. Berlin: Verlag von Julius Springer, 1938

Lebenslauf

Matija Bogdanić

geboren 1976 in Berlin

Berufliche Tätigkeiten

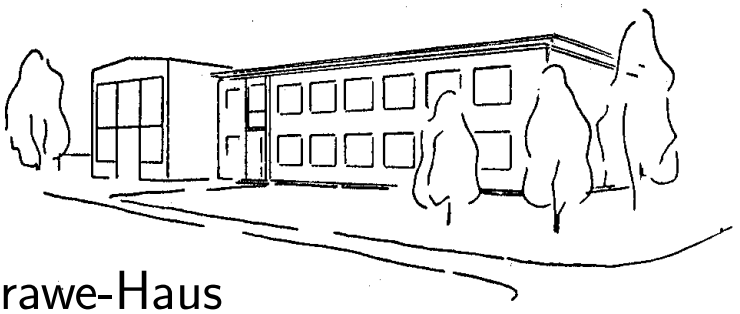
seit 04/2007	Entwicklungsingenieur im Bereich Mechatronik Otto-Systeme der IAV GmbH in Berlin
04/2004 – 03/2007:	Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Technischen Universität Berlin, Institut für Energietechnik, Fachgebiet Energieverfahrenstechnik und Umwandlungstechniken regenerativer Energien, Leitung: Prof. Dr. rer. nat. habil. Frank Behrendt
10/2003 – 03/2004:	Zwischenfinanzierung als studentischer Mitarbeiter bei der IAV GmbH in Berlin

Hochschulausbildung

10/1996 – 02/2004:	Studium der Energie- und Verfahrenstechnik an der Technischen Universität Berlin, Praktika bei den Firmen Berliner Stadtreinigungsbetriebe, Berlin, Thyssen Aufzüge GmbH, Berlin und MegaWATT Ingenieurgesellschaft mbH, Berlin, Abschluss: Diplom-Ingenieur

Schulausbildung

09/1989 – 06/1996:	Askanisches Gymnasium in Berlin, Abschluss: Allgemeine Hochschulreife
08/1983 – 07/1989:	Tempelherren Grundschule in Berlin



MITTEILUNGEN
aus dem Rudolf-Drawe-Haus
der Technischen Universität Berlin

[**739**] Jörg Langohr: Zur Oxidativen Kopplung von Methan
Dissertation (2003)

[**740**] Nils Paust: Implementierung eines Ascheablagerungsmodells in den kommerziellen CFD-code $FLUENT^{TM}$
Diplomarbeit (2004)

[**741**] Nikolas Rommeiss: Zur Verwendung von Bindemitteln in der Pelletproduktion
Diplomarbeit (2004)

[**742**] Armin Muggli: Genehmigungsvorbereitende Untersuchungen zu einem Holzheizwerk unter Berücksichtigung von Brennstoff und Emissionen
Diplomarbeit (2004)

[**743**] Sebastian Matera: On reactive diffusive flows in porous media with regard to gasification of biomass
Studienarbeit (2005)

[**744**] Yunfei Kuo: Effekte der spezifischen Oberfläche von Li/MgO-Katalysatoren bei der oxidativen Kopplung von Methan
Dissertation (2005)

[**745**] Ireen Kamprad, Jan Knodel: Entwicklung einer Online-Analytik für PAK im Produktgas der Biomassevergasung
Projektarbeit (2005)

[**746**] Kicki Klevmar: Kinetic Parameter Estimation for the Pyrolysis of Coal
Studienarbeit (2005)

[**747**] Jochen Grünig: Modellierung und Simulation der Oberflächenreaktionen bei der Vergasung von Holzkohle
Studienarbeit (2005)

[**748**] Nadine Mireille Tchuendem: Förder- und Dosierverhalten sowie Brennstoffcharakterisierung holzartiger Biomasse für eine Wirbelschicht-Vergaseranlage
Diplomarbeit (2005)

[**749**] Ines Braune: Ganzheitliche Systemanalyse in der Energieversorgung
Studienarbeit (2006)

[750] Axel Funke: Implementierung einer Richtlinie zur Messung vom Teergehalt in Produktgasen der Biomassevergasung
Diplomarbeit (2006)

[751] Kicki Klevmar: Numerical Modelling and Simulation of Thermal Deactivation in 3D of Automotive Three-Way Catalytic Converters
Diplomarbeit (2006)

[752] Stephan Gerber: Implementierung eines Euler-Lagrange-Verfahrens zur Modellierung einer inerten Fluid-Feststoff-Strömung
Diplomarbeit (2006)

[753] Max Lautenbach: Messung der Feinstaubemissionen bei Biomassefeuerungen und Bestimmung der Partikeldichte
Diplomarbeit (2006)

[754] Tibor Dalenburg: Theoretische Grundlagen des Projektmanagements und praktische Umsetzung im Rahmen der „International Engineering Summer School (IESS)“ der TU Berlin
Diplomarbeit (2006)

[755] Stephan Gerber: Implementierung und Test einer Vier-Wege-Kopplung zur Berechnung dichter inerter Partikelströmungen
Diplomarbeit (2006)

[756] Kapu Srinivasa Reddy: Thermodynamic Analysis of Transfer Hydrogenation
Masterarbeit (2006)

[757] Anja Morosky: Aerodynamic Design, Parametric Studies and Optimisation of a Gasturbine Combustor Adopting CFD
Diplomarbeit (2006)

[758] Andrea Dziubek: Condensation in an inclined tube with a small diameter - Modelling, analysis and numerical simulation of a moving boundary problem with phase change and surface tension
Dissertation (2006)

[759] Peter Kasten: Entwicklung eines Prüfstands für Porenbrenner-Prototypen
Studienarbeit (2007)

[760] Maria Gaggl: Untersuchungen zur Abtrennung von Wasserstoff aus Gasgemischen mit mikroporösen Membranen aus Beton
Diplomarbeit (2007)

[761] Felix Nelles: Simulationsgestützte Untersuchung des Feinstaubverhaltens in einer Biomassefeuerung
Diplomarbeit (2007)