

2 Grundlagen der Gemischbildung und Verbrennung in Ottomotoren

Ein detailliertes Verständnis der Partikelemission in Verbrennungsprozessen ist aufgrund der komplexen Zusammenhänge noch nicht erreicht worden. Die Kenntnis relevanter Größen wie Flammentemperaturen, Spezieskonzentrationen, Mischungs- und Turbulenzvorgänge wäre hierfür erforderlich. Zur Beschreibung der Rußbildungs- und Oxidationsmechanismen werden üblicherweise vereinfachte Verbrennungsmodelle verwendet. Unter der Annahme einer idealen Verbrennung werden diese anhand der chemischen Reaktionsgleichung Gl. 2.1 beschrieben [118].



Bei einer vollständigen Verbrennung von Kohlenwasserstoffen $C_xH_yO_z$ mit Luft entstehen Stickstoff N_2 , Kohlendioxid CO_2 und Wasserdampf H_2O als Hauptprodukte.

Die Einleitung der Kraftstoffumsetzung findet im Ottomotor durch Fremdzündung statt. Die übertragene thermische Energie führt zu einer Erhöhung der lokalen Temperatur, was in der Entflammung eines idealerweise stöchiometrischen Luft-Kraftstoff-Gemisches resultiert. Das Luftverhältnis λ beschreibt den Zusammenhang der tatsächlich vorhandenen Luft im Brennraum m_L zur benötigten Luftmenge für eine stöchiometrische Verbrennung $m_{L,st}$ (siehe Gl. 2.2) [114].

$$\lambda = \frac{m_L}{m_{L,st}} \quad (2.2)$$

Bei einer stöchiometrischen Gemischzusammensetzung ($\lambda = 1$) findet eine maximale Wärmefreisetzung statt. Bei Brennstoffüberschuss ($\lambda < 1$) ist die Verbrennung infolge Sauerstoffmangels unvollständig. Liegt ein Sauerstoffüberschuss ($\lambda > 1$) vor, sinkt die Verbrennungstemperatur. Dies führt zu langsameren chemischen Reaktionen und geringeren Flammengeschwindigkeiten [98, 114]. Aufgrund der begrenzten Zündfähigkeit des Luft-Kraftstoff-Gemisches ($0,6 < \lambda < 1,4$) bildet der lokale Homogenitätsgrad die Grundvoraussetzungen für die Entstehung eines stabilen und selbsterhaltenden Flammenkerns. Diese Phase beeinflusst maßgeblich die spätere Entwicklung der Flammenausbreitung.

Ausgehend von der Flammenfront wird der Ablauf der Verbrennung als vorgemischt oder nicht-vorgemischt klassifiziert. Finden die Verdampfungs-, Gemischbildungs- und Homogenisierungsvorgänge zwischen dem Brennstoff und dem Oxidator vor Beginn der Verbrennung statt, wird von einer vorgemischten Verbrennung gesprochen. Bei nicht-vorgemischten Flammen erfolgt die Gemischaufbereitung erst während der Verbrennung. Die Verdampfungs-, Misch- und Verbrennungsprozesse laufen nahezu simultan ab. Der zur Verbrennung notwendige Sauerstoff diffundiert über den Flammenrand in die Flamme hinein. Aufgrund dessen wird diese Verbrennungsart auch als diffusiv bezeichnet. Im Laufe der Verbrennung zerfallen die vorgemischten Flammen in kleinere Regionen, die aufgrund langsamer Mischungskontrollierter Prozesse über einen längeren Zeitraum erhalten bleiben. Bei der Diffusionsverbrennung reicht die Reaktionszone bis in unterstöchiometrische Gemischzonen, in denen über Vorläuferprodukte wie polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe der überwiegende Rußanteil gebildet wird [12].

Vorgemischte und diffusionskontrollierte Verbrennung koexistieren im Schichtbetrieb [71]. Eine Differenzierung beider Verbrennungsarten ist hinsichtlich der thermodynamischen und chemischen Charakterisierung der Rußbildungs- und Oxidationsmechanismen notwendig, da sich deren Abläufe voneinander unterscheiden. Diese werden in den Abschnitten 2.2.2 und 2.2.3 näher erläutert.

2.1 Grundlagen der strahlgeführten Benzindirekteinspritzung

Die Direkteinspritzung bei Ottomotoren hat sich in den letzten zehn Jahren als Stand der Technik durchgesetzt. Ein wesentlicher Vorteil gegenüber der Saugrohreinjection ist die Möglichkeit, den Kraftstoff schnell mit hoher Genauigkeit und gezielten Einspritzverläufen dem Brennraum zuzuführen. Durch die Anwendung der Mehrfacheinspritzung hat dieses Einspritzsystem größere Freiheitsgrade für die Entwicklung neuer Brennverfahren zur Verbrauchsoptimierung eröffnet. Durch die Aufteilung der Gesamtkraftstoffmasse in mehrere Einspritzvorgänge wird die Zerstäubungsgüte verbessert. Dadurch findet ein schneller Übergang von der flüssigen in die dampfförmige Kraftstoffphase statt. Der schnellere Verdampfungsprozess bewirkt einen besseren Homogenisierungsgrad des Luft-Kraftstoff-Gemisches. Hierdurch kann auch bei Einspritzvorgängen während der Kompressionsphase ein entflammbares Gemisch an der Zündkerze gebildet werden. Während im Bereich der Zündkerze ein nahezu stöchiometrisches Luftverhältnis vorliegt ($\lambda \approx 1$), entsteht im verbleibenden Brennraumvolumen eine zunehmende Abmagerung des Gemisches. Diese Betriebsart stellt die sogenannte Schichtladung oder der Schichtbetrieb dar.

Durch die Erzielung eines globalen überstöchiometrischen Luftverhältnisses ($\lambda > 1$) wird im Schichtbetrieb sowohl der Hochdruck- als auch der Ladungswechselwirkungsgrad im Teillastbereich verbessert [43, 98, 159]. In Abbildung 2.1 ist der Kreisprozess eines Ottomotors mit stöchiometrischer und überstöchiometrischer Verbrennung in der Teillast zu sehen.

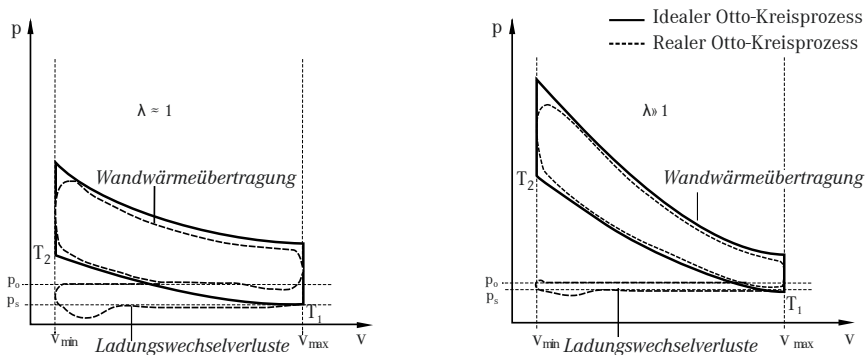


Abbildung 2.1: Kreisprozess eines Ottomotors mit stöchiometrischer (links) und überstöchiometrischer Verbrennung (rechts) [159]

Der theoretisch erzielbare thermodynamische Wirkungsgrad η_{th} ist vom Verdichtungsverhältnis ε des gesamten Zylinderraumes v_{max} zum verbliebenen Raum nach der Verdichtung v_{min} und dem Isentropenexponent k abhängig. k wird aus der spezifischen Wärmekapazität der Gaszusammensetzung berechnet. Für den bestmöglichen thermischen Wirkungsgrad η_{th} muss die Wärmezufuhr bei der höchstmöglichen Verdichtungsendtemperatur T_2 und die Wärmeabfuhr bei der tiefstmöglichen Temperatur T_1 stattfinden. η_{th} wird nach der Gl. 2.3 definiert [98].

$$\eta_{th} = 1 - \left(\frac{v_{min}}{v_{max}} \right)^{k-1} = 1 - \left(\frac{1}{\varepsilon} \right)^{k-1} \quad (2.3)$$

Durch den erhöhten Anteil an Luft bei überstöchiometrischen Gaszusammensetzungen sinkt die spezifische Wärmekapazität, was eine Steigerung des Isentropenexponenten k hervorruft. Höhere k Werte führen während der Kompression zu einem höheren Druck- und Temperaturanstieg. Dadurch wird ein höherer thermodynamischer Wirkungsgrad η_{th} erreicht. Während der Verbrennung und Expansion können die Wandwärmeverluste auch geringer sein [159]. Aufgrund der Inertgasschicht brennt die Flamme im zentralen Brennraumvolumen mit größerem Abstand zu den Wänden. Dadurch reduziert sich der Wärmeübergangskoeffizient zwischen dem Verbrennungsgas und den vergleichsweise kälteren Brennraumbauteilen. Die Wandwärmeverluste werden geringer. Des Weiteren ermöglicht die Schichtladung eine theoretisch drosselfreie Qualitätsregelung, wodurch die Ladungswechselverluste reduziert werden. Im pv-Diagramm 2.1 ist zu sehen, dass die teilweise geschlossene Drosselklappe im stöchiometrischen Betrieb zu hohen Druckverlusten führt. Das geschichtete Magerbrennverfahren ist also thermodynamisch effizienter als ein stöchiometrischer Prozess. Diese Betriebsart ermöglicht eine Reduktion des spezifischen Kraftstoffverbrauchs um bis zu 30% [1, 15].

Hierbei entsteht ein Zielkonflikt zwischen dem thermodynamisch erreichbaren Wirkungsgrad und den einzuhaltenden Schadstoffemissionen. Im Schichtbetrieb muss wenige Grad Kurbelwinkel nach der Einspritzung gezündet werden, damit der sogenannte Schichtladeeffekt nicht verloren geht, was zu einer abfallenden Entflammbarkeit des Gemisches führen würde. Aufgrund der reduzierten Zeit für die Kraftstoffverdampfung und Gemischaufbereitung können heterogene Luft-Kraftstoff-Gemische sowie Kraftstofftropfen während der Entflammungsphase vorliegen, welche zur Rußbildung in der Verbrennungszone führen. Der Ruß wird zuerst in den unterstöchiometrischen Zonen der vorgemischten Verbrennung gebildet. Durch die ablaufende Wärmefreisetzung wird die noch übrige flüssige Kraftstoffmasse anschließend diffusionsgesteuert umgesetzt. Dies führt zur Kraftstoffpyrolyse und somit zur Bildung der sogenannten polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAKs). Sie sind die primären Rußvorläufer, da sich durch Reaktion dieser Moleküle untereinander dreidimensionale Strukturen bilden können. Somit kommt es zur Bildung der ersten Partikel. Die Verbrennung im Schichtbetrieb weist demnach das Risiko erhöhter Partikelemission auf.

Im Schichtbetrieb werden leicht unterstöchiometrische Gasgemische am Zündort entflammt. Dadurch entsteht ein sehr früher Verbrennungsschwerpunkt, welcher entfernt vom Idealwert der homogenen Verbrennung (6 bis 8 °KW n.ZOT) ist. Die anschließende diffusionskontrollierte Verbrennung im Übergangsbereich des Gemisches zur umgebenden Luft führt zu einer langen Umsetzungsdauer, welche einen unsymmetrischen Brennverlauf verursacht [71]. In der Expansionsphase nimmt die Umsatzgeschwindigkeit stark ab und verzögert die weitere Verbrennung. Dabei kann ein lokales Flammenlöschen infolge zu kleiner Flammengeschwindigkeit und magerer Gemische auftreten, wobei ein Teil des Kraftstoffs nicht vollständig von der Verbrennung erfasst wird. Hierdurch kann eine Emission von Kohlenwasserstoffen entstehen, welche eine Verschlechterung des Hochdruckwirkungsgrads und damit eine Erhöhung des

Kraftstoffverbrauchs hervorruft. Ziel der Brennverfahrensentwicklung ist es, ein geringes Rohemissionsniveau bei gleichzeitiger Einhaltung des Verbrauchpotenzials zu erreichen.

2.1.1 Thermodynamik des Magerbrennverfahrens

In den letzten Jahren wurden spezielle konstruktive Maßnahmen und eine gezielte Strahldynamik entwickelt, um im Schichtbetrieb ein zündfähiges Gemisch sicherzustellen und gleichzeitig mit dem auftretenden Turbulenzzzerfall die Flammenausbreitung zu verbessern. Abhängig von der jeweiligen Einspritzrichtung, relativ zur Kolbenform und der Zylinderinnenströmung, ergeben sich unterschiedliche Konzepte für den Einsatz des Magerbrennverfahrens: die wand-, luft- und strahlgeführten Brennverfahren [159, 32]. In Abbildung 2.2 sind alle drei Konzepte dargestellt.

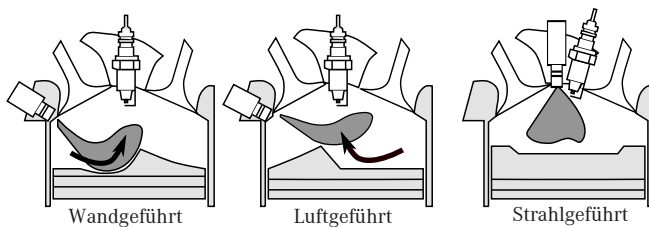


Abbildung 2.2: Brennverfahren von Ottomotoren mit Direkteinspritzung und Schichtladungsfähigkeit [166]

Die wand- und luftgeführten Brennverfahren sind charakterisiert durch die weit entfernte räumliche Anordnung von Einspritzdüse und Zündkerze. Beim wandgeführten Brennverfahren wird der Kraftstoff durch eine gezielte Ausformung der Kolbenmulde an den Zündort transportiert. Beim luftgeführten Brennverfahren wird die Zylinderinnenströmung genutzt, um den Kraftstoffstrahl in Richtung des Zündorts zu transportieren. Die Ladungsbewegung soll im Idealfall eine Gemischbildung ohne Wandbenetzung ermöglichen [32].

Beide Brennverfahren können das thermodynamische Potential der Schichtladung aufgrund ihrer ungünstigen Prozessführung und erhöhter Schadstoffemissionen nur bedingt nutzen. Die Interaktion des Einspritzstrahls mit der Kolbenmulde sowie die langen Gemischbildungszeiten erschweren eine stabile Schichtladung an der Zündkerze. Insbesondere beim wandgeführten Brennverfahren führt die Kraftstoffbenetzung des Kolbenbodens zu Wandfilmen. Verbleibt ein Teil des Kraftstoffs bis zum Zündzeitpunkt in flüssiger Form, kommt es erst nach der Verbrennungseinleitung zur Erwärmung und Verdampfung der flüssigen Kraftstoffphase. Die daraus entstehende diffusionskontrollierte Verbrennung führt zu einem verlangsamten Verlauf des Kraftstoffumsatzes. In Folge der diffusiven Verbrennung des Wandfilms wird die Rußbildung begünstigt [137].

Im Gegensatz zu den wand- und luftgeführten Brennverfahren ist das strahlgeführte Brennverfahren durch eine nähere räumliche Anordnung von Zündkerze und Einspritzdüse charakterisiert. Dadurch wird ein kürzerer zeitlicher Abstand zwischen dem Einspritzenden und der Zündung ermöglicht. Die Einspritzstrahldynamik dominiert die Gemischbildungsprozesse, weshalb keine Unterstützung durch die Kolbengeometrie oder die Zylinderinnenströmung benötigt wird. Durch die Vermeidung der Kraftstoffbenetzung von Brennraumoberflächen

werden der Hochdruckwirkungsgrad erhöht und die Partikel- und Kohlenwasserstoffemission reduziert.

Unter idealen Umständen hat die Ladungsbewegung einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Strahlstabilität und damit auf die Entflammungsbedingungen. Bedingt durch die späte Einspritzung während der Kompressionsphase können jedoch am Zündort hohe Strömungsschwankungen auftreten, wodurch räumliche Gradienten des Luftverhältnisses λ entstehen. Um ein entflammbares Gemisch am Zündort zu gewährleisten, wird ein stabiler Kraftstoffstrahl benötigt, der sich unter wechselnden Brennraumbedingungen reproduzierbar ausbreitet. Der piezo-aktivierte Injektor mit nach außen öffnender Düse (A-Düse) ist das geeignete Einspritzsystem für ein strahlgeführtes Brennverfahren.

Beim Piezo-Injektor strömt der Kraftstoff als ringförmige Flüssigkeitslamelle aus, die in Ligamente und schließlich in Tröpfchen zerfällt. Durch die Auslegung der Nadelsitzgeometrie kann die Form des Strahlkegelwinkels definiert werden. Charakteristisch für die A-Düse ist die Ausbildung eines torusförmigen Randwirbels außerhalb des Hohlkegelstrahls, in dem die Entflammung erfolgt, und eines gegensätzlichen Randwirbels innerhalb des Hohlkegelstrahls [16, 134, 158]. Der Nadelhub bestimmt über die freigegebene Querschnittsfläche den Kraftstoffdurchfluss und somit die eingespritzte Kraftstoffmasse, die nahezu linear mit dem Hub zunimmt. Der Injektor wird mit einem Einspritzdruck von bis zu 200 bar betrieben. Durch die Drucksteigerung wird eine Verringerung der Tropfengröße und damit eine höhere Verdampfungsgeschwindigkeit erzielt. Die kurzen Ansteuerzeiten des Piezo-Injektors in Kombination mit erhöhtem Einspritzdruck ermöglichen den Einsatz der Mehrfacheinspritzung. Dadurch werden die Gemischbildungsprozesse beschleunigt. Dies resultiert in einer Erweiterung des zeitlichen Entflammungsfensters, wodurch die Robustheit des strahlgeführten Magerbrennverfahrens gegenüber zyklischen Strömungsschwankungen und Produktionstoleranzen in der Einspritzstrahlgeometrie erhöht wird.

2.1.2 Charakterisierung der Ladungsbewegung

Die während der Ansaugphase erzeugte Zylinderinnenströmung wird als Ladungsbewegung bezeichnet. An den Einlassventilen entstehen kleinskalige Wirbelstrukturen, die sich durch die Interaktion mit den Brennraumwänden und der sich nach unten bewegenden Kolbenfläche zu gerichteten Strömungen entwickeln. Während der Aufwärtsbewegung des Kolbens wird die Ladungsbewegung komprimiert. Im weiteren Verlauf bricht sie auf und zerfällt in kleinere Strukturen, welche einen definierten Turbulenzgrad erzeugen [36].

Für den Fall einer vorwiegend gerichteten Strömung im Zylinder wird zwischen zwei Strömungsstrukturen unterschieden: der Drall- und der Tumble-Ladungsbewegung. Der Aufbau einer Drall-Ladungsbewegung erfolgt durch eine tangential zur Zylinderbohrung gerichtete Einstromkomponente, die eine rotatorische Bewegung um die Zylinderachse erzeugt. Der Drall entsteht durch eine exzentrische Lufteinströmung und kommt insbesondere bei Dieselmotoren zum Einsatz.

Die Tumble-Ladungsbewegung stellt dagegen die Rotation um eine zur Zylinderachse senkrecht stehende Achse dar. Entlang der Zylinderwand entsteht eine vertikal gerichtete Ladungsbewegung, die später am Kolbenboden umgelenkt wird. Sie entsteht bei symmetrischer Anordnung der Einlasskanäle. Dabei wird eine definierte Ablösung der einströmenden Luft am Einlasskanal genutzt, um eine gezielte Führung der Strömung in den Brennraum zu generieren. Der Kanaleinlaufwinkel beeinflusst den Winkel zur Zylinderachse, unter dem hauptsächlich das Einströmen in den Brennraum erfolgt. Im Übergangsbereich zwischen dem Kanaleinlauf und

dem Ventilsitzring verändert der Ventilwinkel den Kanalwinkel. Der Ventilwinkel nimmt damit Einfluss auf den Strömungsabriss von der stärker gekrümmten Innenseite des Einlasskanals, der zum Ausströmen aus dem Ventilspalt führt. Hierdurch wird eine asymmetrische Verteilung der Lufteinströmung über dem Ventilspalt generiert, die für die Entstehung der Tumble-Bewegung verantwortlich ist [72].

Je nach Richtung des Strömungsabrisses am Einlasskanal werden zwei Tumble-Strömungen unterschieden. Im Fall einer Überströmung über den oberen Ventilspalt wird die Ladungsbewegung als Forward-Tumble bezeichnet. Durch eine sehr steile Einlasskanalführung kann der untere Ventilspalt stärker angeströmt werden. Dadurch dreht die Ladungsbewegung der Einlassseite entgegen und wird als Reverse-Tumble bezeichnet [36, 40]. Eine schematische Darstellung der beschriebenen Ladungsbewegungen ist in Abbildung 2.3 abgebildet.

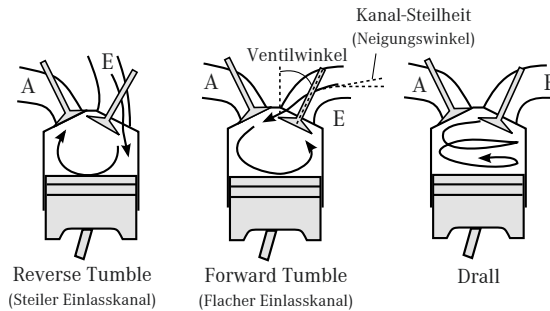


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Zylinderinnenströmung. Tumble- (links) und Drall-Ladungsbewegung (rechts) [40]

Beginnend mit der Zerstäubung fördert die Ladungsbewegung sowohl den Tropfenzerfall als auch den Stoff- und Wärmetransport, sodass die Gemischbildung beschleunigt wird. Dies führt zu einer verbesserten Homogenisierung des Gemisches und als Folge davon zu einer stabileren Entflammung und Verbrennung.

Im Schichtbetrieb kann die Ladungsbewegung den Transport des Luft-Kraftstoff-Gemisches zum Zündort unterstützen. Dies ermöglicht einen größeren zeitlichen Abstand zwischen den Einspritzvorgängen und der Zündung, ohne die Verbrennungsstabilität zu beeinträchtigen [106, 166]. Auch die sich an die Entflammungsphase anschließende Verbrennung läuft durch ein erhöhtes Turbulenzniveau schneller und stabiler ab. Die während der Kompressionsphase generierte Turbulenz fördert eine schnelle Umsetzung des Kraftstoffs. Das geschieht, indem die Ladungsbewegung in turbulente Wirbelstrukturen zerfällt. Die schnellere Verbrennung erfolgt aufgrund der Faltung der Flammenfront durch die turbulenten Wirbelstrukturen und der damit einhergehenden Vergrößerung der reaktiven Oberfläche der Flammenfront. Im stöchiometrischen Motorbetrieb und insbesondere unter Vollast ist ein hohes Turbulenzniveau für eine schnelle Umsatzgeschwindigkeit erwünscht. Damit steht im Verlauf der Verbrennung dem jeweils noch unverbrannten Gemisch weniger Zeit für chemische Vorreaktionen zur Verfügung [51, 139]. Andererseits führen der Temperatur- und Druckanstieg zu einer unkontrollierten Selbstentzündung des noch nicht von der Flammenfront erfassten Gemisches.

Bei Ottomotoren mit Ladungsschichtung ist ein wesentliches Ziel der Brennverfahrensentwicklung, die Intensität und die Richtung der Zylinderinnenströmung so zu gestalten, dass die Gemischaufbereitung zum Zündzeitpunkt im Schichtbetrieb sowie bei einer stöchiometrischen

Verbrennung im Bereich hoher Lasten optimal sind. Hierbei muss berücksichtigt werden, dass zu hohe Turbulenzintensitäten zu einem Anstieg der zyklischen Schwankungen führen, wodurch sich die Wahrscheinlichkeit von Zündaussetzern im Schichtbetrieb erhöht. Ein Kompromiss zwischen den Anforderungen beider Betriebsarten muss erzielt werden. Hierzu können eine gezielte Formgebung der Ventil- und Einlasskanalgeometrie sowie zusätzliche Schaltorgane wie z.B. Tumble- oder Drallklappen zum Einsatz kommen.

2.2 Innermotorische Schadstoffentstehung

2.2.1 Gasförmige Emissionen

Im Gegensatz zur idealen Verbrennungsreaktion, beschrieben in Gl. 2.1, entstehen bei jeder realen Verbrennung unvermeidlich Schadstoffkomponenten: Kohlenmonoxid (CO), Kohlenwasserstoffe (HC) und Stickstoffoxide (NO_x) als gasförmige Emissionen sowie Partikelemission.

Während einer ottomotorischen Verbrennung stammen diese Nebenprodukte im Wesentlichen aus unvollständigen Oxidations- und Hochtemperaturprozessen. Deren Bildungsmechanismen sind demnach unter Berücksichtigung des lokalen Luftverhältnisses und der Verbrennungstemperatur zu betrachten [98]. Abhängig von der Aufbereitungsgüte und der Verbrennungsart unterscheidet sich das Konzentrationsniveau der Abgasemissionen. Aufgrund dessen müssen die Bildungsmechanismen für die stöchiometrischen und mageren Betriebsarten getrennt voneinander beschrieben werden. Eine Darstellung der Schadstoffemissionen eines Ottomotors mit strahlgeführtem Brennverfahren in Abhängigkeit vom globalen Luftverhältnis λ ist der Abbildung 2.4 zu entnehmen.

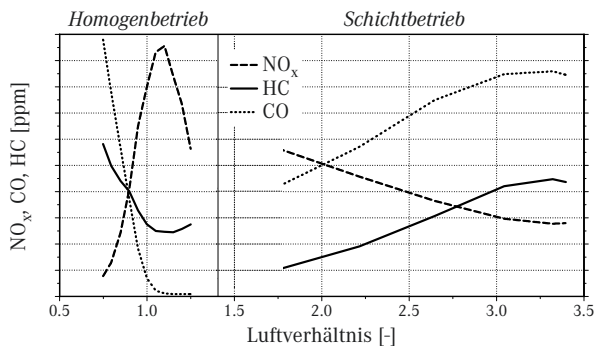


Abbildung 2.4: Schadstoffemissionen in Abhängigkeit vom Luftverhältnis λ an einem Vierzylinderottomotor mit Direkteinspritzung und strahlgeführtem Brennverfahren

Kohlenmonoxid (CO) ist hinsichtlich seiner starken Affinität zu Hämoglobin bereits bei niedrigen Konzentrationen gesundheitsschädlich. Bei lokal unterstöchiometrischem Luftverhältnis entsteht CO als Zwischenprodukt der Kohlendioxidbildung, da die Oxidation von CO in Konkurrenz zur H_2 -Oxidation (siehe Gl. 2.4) steht [98].



Bei ausreichender Sauerstoffkonzentration kann CO vollständig zu CO₂ oxidiert werden. Ein Hauptreaktionspfad findet über das Hydroxylradikal OH statt (siehe Gl. 2.5) [98].



Die obige Reaktion ist von der OH-Radikalkonzentration abhängig. Sie dominiert bei den meisten Verbrennungsbedingungen. Im Schichtbetrieb wird CO aufgrund niedriger Verbrennungstemperaturen und lokaler Gemischinhomogenitäten hauptsächlich in wandnahen Bereichen des Brennraums gebildet [98].

Unverbrannte Kohlenwasserstoffe (HC) setzen sich aus einer Vielzahl verschiedener Komponenten zusammen. Einige davon stammen unverändert aus den Kraftstoffkomponenten. Andere Kohlenwasserstoffe entstehen als Produkte der unvollständigen Verbrennung. Unter diesen befinden sich polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK). Sie sind die wichtigsten Rußvorläufermoleküle. Der Großteil der HC-Emission entsteht während der Kaltstart- und Warmlaufphase. Gründe hierfür sind die erschwerte Gemischaufbereitung und Oxidation aufgrund der niedrigen Brennraumtemperaturen. Bei warmem stöchiometrischem Motorbetrieb entstehen Kohlenwasserstoffe in geringem Maße. Da diese von der Verbrennungstemperatur, der Kohlenwasserstoff- und Sauerstoffkonzentration sowie der verfügbaren Zeit zur Oxidation abhängen, liegt das Minimum der HC-Emissionen bei leichtem Luftüberschuss ($\lambda \approx 1,2$) [159]. Im Schichtbetrieb sind zusätzliche Bildungsmechanismen, die sogenannten Quench-Effekte, als Hauptursache der Kohlenwasserstoffemission bekannt [98, 137]. Als Grund hierfür sind die starken Luftgradienten im Brennraum zu nennen. Insbesondere bei niedrigen Motorlasten kann in den stark ausgemagerten Zonen eine zu langsame Flammenausbreitung stattfinden. Beim Wall-Quenching nimmt die Ausbreitung der Flammenfront aufgrund von Wärmeabfuhr in der Nähe der Bauteiloberfläche stark ab. Dies führt zum Erlöschen der Flamme und somit zur Bildung einer Schicht unverbrannter Kohlenwasserstoffe auf den Zylinderwänden. Eine weitere Ursache ist das Erlöschen der Flammenfront. Der Effekt wird als Flame-Quenching bezeichnet. Er findet statt, wenn in der Reaktionszone mehr Wärme entzogen wird, als durch die chemische Reaktion zugeführt wird. Zusätzliche Kohlenwasserstoffemission kann infolge Zündaussetzer entstehen, wenn die Gemischaufbereitung am Zündort nicht entflammbar ist.

Stickoxide (NO_x) fassen die Komponenten Stickmonoxid NO (ca. 90%), Stickstoffdioxid NO₂ (ca. 9%) und Distickstoffdioxid N₂O (ca. 1%) zusammen. Unter atmosphärischen Bedingungen werden sie fast vollständig in NO₂ umgewandelt [159, 98]. Die NO-Bildung erfolgt bei der ottomotorischen Verbrennung über drei unterschiedliche Pfade; die thermische NO-Bildung, die Prompt-NO-Bildung und die NO-Bildung über den N₂O-Mechanismus. Die Bildungsmechanismen sind stark von den thermodynamischen Bedingungen abhängig, wobei zumeist die thermische NO-Bildung, die mit dem Zeldovich-Mechanismus [167] beschrieben wird, dominiert. Er besteht aus folgenden Reaktionsgleichungen (Gl. 2.6, 2.7 und 2.8).



Für die thermische NO-Bildung ist neben einer hohen Verbrennungstemperatur eine genügend hohe Sauerstoffkonzentration erforderlich. Das Maximum der NO-Konzentration tritt bei leicht mageren Luftverhältnissen ($1,05 < \lambda < 1,1$) auf. Infolge der lokalen Spitzenverbrennungstemperaturen und der heterogenen Gemischzusammensetzung mit lokal überstöchiometrischen

Luftverhältnissen kann die thermische NO-Bildung im Schichtbetrieb höher als im stöchiometrischen Betrieb sein.

In der Flammenfront selbst oder deren unmittelbaren Umgebung entsteht Prompt-NO. Die Bildung beruht auf der Reaktion von Kohlenwasserstoffradikalen CH mit dem Luftstickstoff unter Bildung von Blausäure HCN, welche zu NO weiterreagiert. Bei einer niedrigen Verbrennungstemperatur und genügend hoher Kohlenwasserstoffkonzentration, die bei unterstöchiometrischen Luftverhältnissen vorliegt, steigt der Anteil an Prompt-NO-Bildung. Der Entstehungsmechanismus wird durch die Gl. 2.9 beschrieben [35].



Aufgrund der niedrigen Aktivierungsenergie tritt das prompte NO bereits bei sehr niedrigen Verbrennungstemperaturen (ca. 1000 K) auf und stellt bei Diffusionsflammen einen wichtigen Anteil der NO-Emission dar.

Das über N_2O erzeugte NO entspricht weitgehend dem thermischen NO-Mechanismus. Die Bildung erfolgt durch ein zusätzliches N Molekül, sodass N_2O entsteht und mit atomarem Sauerstoff NO bildet [91]. N_2O wird analog zur ersten Reaktion des Zeldovich-Mechanismus gebildet (siehe Gl. 2.10).



Die NO-Bildung erfolgt durch Oxidation von N_2O entsprechend Gl. 2.11.



Bei global mageren Luftverhältnissen und hohem Druck gewinnt dieser Reaktionsweg zunehmend an Bedeutung. Einerseits wird die Bildung der Kohlenwasserstoffradikale reduziert, welche zu promptem NO reagieren. Andererseits sinken infolge des mageren Luftverhältnisses die globalen Verbrennungstemperaturen, wodurch die thermische NO-Bildung erschwert wird. Bei stöchiometrischer Verbrennung trägt diese Reaktion einen vernachlässigbaren Anteil zu den gesamten NO_x -Emissionen bei.

2.2.2 Grundlagen der Rußbildung und -oxidation

Unter dem Begriff Partikel der motorischen Verbrennung werden alle Abgasbestandteile zusammengefasst, die bei einer definierten maximalen Temperatur aus dem verdünnten Abgas auf einem Probefilter abgeschieden werden und sich durch Auswiegen nachweisen lassen [31]. Die Partikelemission besteht aus einer Vielzahl von Substanzen, die als flüchtige und nicht flüchtige Anteile abgeschieden werden können. Allgemein umfassen die Partikel kettenförmig ungeordnete Strukturen mit Ruß (Elementarer Kohlenstoff, EC) und angelagerten organischen Verbindungen (Organischer Kohlenstoff, OC) wie Kohlenwasserstoffe, Sulfatmoleküle und Wasser. Die Partikelemission kann durch ihre Massen- oder Anzahlkonzentration gemessen werden. Zusätzlich kann aus dem Volumenanteil der Rußvolumenbruch f_v ermittelt werden. Er beschreibt das Verhältnis des Volumenanteils des Rußes zum gesamten Abgasvolumen.

Die Rußentstehung ist hochdynamischen Strömungsvorgängen und chemischen Abläufen unterworfen. Trotz erheblicher Fortschritte im Verständnis einzelner Schritte der Rußbildung gibt es noch kein gesamtheitliches Modell, welches die ablaufenden Mechanismen sowie die einzelnen Reaktionen vollständig beschreibt oder vorhersehen kann. Die derzeit überwiegend

akzeptierte Hypothese der Rußbildung ist eine Abfolge von physikalischen und chemischen Reaktionsschemen, welche in sechs überlappenden Prozessen klassifiziert werden [12]:

1. Pyrolyse: Chemische Reduktion der Brennstoffmoleküle zu Acetylen und Bildung erster polyzyklischer, aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK)
2. Planares Wachstum der PAK: Bildung erster Kohlenstoffgitterstrukturen
3. Rußkeimbildung: Kondensation und Bildung von Rußkernen
4. Koaleszenz und Koagulation: Wachstum der Rußkeime zu Rußpartikeln durch Oberflächenwachstum und Zusammenschließen von Rußkernen zu Rußteilchen
5. Agglomeration: Bildung von Rußprimärteilchen zu längeren, kettenförmigen Strukturen
6. Rußoxidation: Abbau der entstandenen Rußpartikel

Eine schematische Darstellung des zeitlichen Ablaufes der fünf Entstehungs- und Wachstumsmechanismen ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Die Oxidation kann an jedem Zeitpunkt des gesamten Prozesses erfolgen.

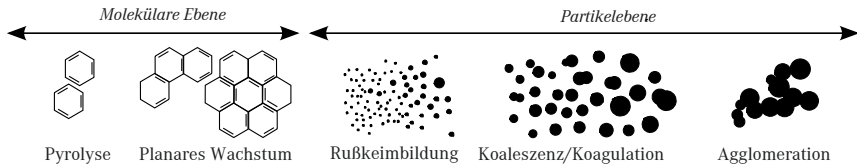


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Partikelbildungsmechanismen [12]

Pyrolyse

Die Pyrolyse beschreibt einen thermo-chemischen Prozess, in welchem die Brennstoffmoleküle unter sehr hohen Temperaturen und Sauerstoffausschluss ihre Struktur ändern. Durch die eingebrachte thermische Energie werden die Brennstoffmoleküle unter Abspaltung von Wasserstoff zu kleineren gesättigten Kohlenwasserstoffen reduziert. Eine Gruppe der Kohlenwasserstoffmoleküle bilden die sogenannten polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK), welche eine der wichtigsten Rußvorläufermoleküle sind. Spezies wie Acetylen (C_2H_2), Ethen (C_2H_4), Methan (CH_4) oder Propylen (C_3H_6) [47] erzeugen die ersten aromatischen Ringe, wobei einer der wichtigsten Pfade der Rußbildung die Addition von Vinyl (C_2H_3) zu Acetylen ist [38]. Der Ablauf wird von den vorherrschenden Spezieskonzentrationen und Temperaturbedingungen kontrolliert und kann durch zwei Reaktionspfade erfolgen, eine Niedertemperatur- und eine Hochtemperaturroute [143].

Planares Wachstum der Polyzyklischen Aromatischen Kohlenwasserstoffe

Während der initialen Hochtemperaturreaktionen findet das Wachstum der PAK zur Bildung des ersten Ringes statt. Dieser Bildungsmechanismus erfolgt durch einen zwei-sequentiellen Prozess, der durch die Abstraktion von Wasserstoff (H) und C_2H_2 -Addition (HACA-Reaktion) zur Polymerisation des Benzolringes (C_6H_6) führt [38]. Obwohl dieser chemische Ablauf dominiert, sind unter gewissen Umständen die Reaktionen aromatischer Ringe mit anderen Spezies auch möglich [38]. Diese Prozesse setzen ein hohes Maß an Energie frei, welche ein weiteres PAK-Wachstum hervorruft. Die Reaktionszeit ist dennoch limitiert, da die Prozesse kinetisch begrenzt sind. Beide Bildungspfade sind in Abbildung 2.6 schematisch dargestellt.

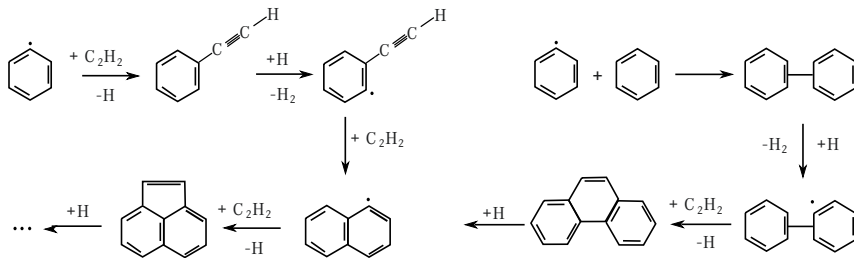


Abbildung 2.6: HACA-Reaktion (links) und Polymerisationsprozess (rechts) des planaren Wachstums der PAK [38]

Rußkeimbildung

Im weiteren Verlauf koagulieren die planaren PAK zu kugelförmigen Strukturen, die als Nuklei oder Primärpartikel bezeichnet werden. Dieser Koagulationsprozess erfolgt als eine Anlagerung von zwei oder mehreren PAK-Molekülen. Die Primärpartikel charakterisieren sich durch ihre näherungsweise sphärische Form. Allgemein besitzen sie ein $\frac{H}{C}$ -Verhältnis von ca. 1/8 und weisen einen Durchmesser von 1,5 nm bis 2 nm auf [8, 63]. Analog zum planaren Wachstum ist die Rußkeimbildung auf die primäre räumliche Reaktionszone begrenzt. Dort treten ausreichende Reaktionstemperaturen und Ionenkonzentrationen auf [8, 157]. Die Nuklei tragen keinen signifikanten Anteil zur gesamten Rußmasse bei. Sie erhöhen jedoch die verfügbare Oberfläche für die darauffolgenden Wachstumsmechanismen.

Oberflächenwachstum und Koagulation

Nach dem Nukleationsprozess führen heterogene Reaktionen der Gasphasenmoleküle mit der verfügbaren Partikeloberfläche zu einem weiteren Partikelwachstum, dessen Reaktivität bei kleineren bzw. jüngeren Partikeln ausgeprägter ist [8]. Das Oberflächenwachstum basiert auf dem HACA-Reaktionsprinzip. Hierbei hängt das Wachstum exponentiell vom $\frac{H}{H_2}$ -Verhältnis und der Sauerstoffkonzentration ab. In diesem Prozess bleibt die Partikelanzahl nahezu konstant, während das $\frac{H}{C}$ -Verhältnis ab- und die Partikelgröße zunimmt. Aufgrund der abnehmenden Acetylenkonzentration in der Flamme und daraus resultierend der Partikelreaktivität nimmt das Oberflächenwachstum zeitlich ab. Weiterhin bestimmt die Flammentemperatur den Abklingvorgang mit exponentiell abnehmender Geschwindigkeit [12]. Ca. 95% der gebildeten Rußmasse ist durch das Oberflächenwachstum bedingt.

Neben dem Oberflächenwachstum stellen sämtliche Kollisionsvorgänge die Koagulationsprozesse dar. Die Koagulation wird als Kollision von Partikeln beschrieben, die eine Teilchenbildung hervorbringen, welche aus der Summe der beiden zusammengestoßenen Massen besteht. Infolge der Koagulation bzw. Verschmelzung von Partikeln nimmt die Partikelanzahl ab, wobei die Gesamtmasse unverändert bleibt. Dieser Prozess lässt sich durch die Smoluchowski Gleichung (Gl. 2.12) beschreiben [12, 144].

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{j,i-j} \cdot N_j \cdot N_{i-j} - \sum_{j=1}^{n_{\max}} \beta_{i,j} \cdot N_i \cdot N_j \quad i = 2, \dots, n_{\max} \quad (2.12)$$

N_i und N_j sind die Partikelanzahl der Größen i und j . Durch den Koagulationsprozess führen sie zur Entstehung von Partikeln der Größe i . Der erste Teil der Gleichung stellt die Bildungsrate von Partikeln der Größe i durch die Koagulation kleinerer Partikel der Größen j und $i-j$ dar. Der Zweite beschreibt die Abnahme von Partikeln der Größe i durch die Kollision mit anderen Partikeln. Der Koagulationskoeffizient $\beta_{i,j}$ zwischen den Partikeln i und j hängt vom umgebenden Druck und den Partikeldurchmessern ab. Bei diesem Vorgang nimmt der mittlere Primärpartikeldurchmesser d_p zu und die Gesamtanzahl der Primärpartikel N ab.

Agglomeration

Der Agglomerationsprozess umfasst die Bildung von kettenförmigen Strukturen. Sie entstehen, wenn in der Gasphase nicht mehr ausreichend Kohlenwasserstoffe vorhanden sind oder die Reaktionsfreudigkeit der Partikel abnimmt. Es handelt sich um eine andere Form der Koagulation, da die Primärpartikel nur an der Oberfläche aneinander haften. Im Gegensatz zur Koagulation behalten die Primärpartikel der Agglomerate ihre Struktur. Die Gesamtanzahl der Primärpartikel N in einem Agglomerat wird durch Gl. 2.13 berechnet.

$$N = k_f \left(\frac{R_g}{d_p} \right)^{D_f} \quad (2.13)$$

d_p ist der Primärpartikeldurchmesser und k_f der experimentell ermittelte fraktale Faktor [63]. Um das räumliche Verhalten des Agglomerats im Verhältnis zum aerodynamischen Durchmesser zu beschreiben, wird der sogenannte Radius of Gyration R_g verwendet [92]. Diese Kenngröße beschreibt den Radius einer Kugelschale, welche die gleiche Masse und das gleiche Trägheitsmoment wie das ursprüngliche Agglomerat aufweist. Die fraktale Dimension D_f ist ein dimensionsloser Wert und wird zur Beschreibung der Oberflächenstruktur des Agglomerats verwendet.

Der Rußvolumenbruch f_v beschreibt das Verhältnis des Volumenanteils des Rußes zum gesamten Volumen. f_v ergibt sich aus der Berechnung einer Kugel $\frac{\pi}{6} \cdot D^3$ multipliziert mit der Teilchenzahldichte N_v . Unter der Annahme eines mittleren Partikeldurchmessers D lässt sich f_v mittels Gl. 2.14 ermitteln.

$$f_v = \frac{\pi}{6} \cdot N_v \cdot D^3 \quad (2.14)$$

Diese Gleichung impliziert die sphärische Form der Rußpartikel. In Wirklichkeit weisen die Agglomerate eine normale Größenverteilung auf, die sich mit zunehmendem Alter einer bimodal und lognormalen Verteilung annähert. Der Effekt ist darauf zurückzuführen, dass parallel zum Partikelwachstum weiterhin Nukleation stattfindet [143]. Dieses Phänomen wird im Unterkapitel 2.2.4 experimentell untersucht.

Rußoxidation

Abhängig von den vorherrschenden Verbrennungsbedingungen kann der überwiegende Anteil des gebildeten Rußes oxidiert werden. Die Rußoxidation umfasst sowohl die Oxidationsvorgänge der Rußvorläuferspezies in der Gasphase als auch die heterogenen Oberflächenreaktionen auf den Rußpartikeln. Die Umsetzung fester Kohlenstoffe und Kohlenwasserstoffe zu gasförmigen Verbrennungsprodukten CO , CO_2 und H_2O kann in allen Phasen der Rußbildung stattfinden. Erfolgt die erste Rußoxidation zu CO , können die Partikel nicht in ihre ursprüngliche Form zurückgebildet werden. Der oxidative Vorgang erfolgt über einen Prozess in zwei Schritten. Zuerst diffundieren die oxidativen Moleküle aus der Umgebung an die verfügbare Partikeloberfläche. Die gasförmigen Reaktanten bleiben an der Partikeloberfläche haften. Dieser Prozess wird als Adsorption bezeichnet. Nach der oxidativen Reaktion verlassen die gebildeten CO - und

CO_2 - Moleküle die Partikeloberfläche durch Desorption [94]. O_2 , O und OH sind die primären Oxidationsspezies. Bei unterstöchiometrischen Luftverhältnissen dominieren OH und O als oxidative Moleküle, während O_2 bei überstöchiometrischen Luftverhältnissen bestimmend ist [8, 47]. Im Bereich von Sauerstoffpartialdrücken über 1 bar und Temperaturen unter 2000 K ist die Rußoxidationsrate nahezu ausschließlich von der Temperatur abhängig [162].

2.2.3 Thermodynamische und chemische Aspekte der Rußbildung

Für eine Charakterisierung der Rußbildung während des Verbrennungsprozesses wird zwischen vorgemischter und nicht-vorgemischter Verbrennung unterschieden.

Die Rußbildung bei vorgemischten Flammen kann als idealisiertes Modell betrachtet werden. Der gesamte Brennraum wird als eine einzige homogene Gemischzone betrachtet. Die Neigung zur Rußbildung eines Kraftstoffs der Form C_mH_n hängt von der Sauerstoffkonzentration in der Reaktionsgleichung Gl. 2.15 ab.



Geschieht die chemische Reaktion von Kohlenwasserstoffen C_mH_n mit einer definierten Menge y an Sauerstoff O_2 unter der Bilanz $m > 2y$, findet die Verbrennung unter unterstöchiometrischen Bedingungen statt. Der Brennstoff wird im Überschuss eingesetzt und folglich nicht vollständig zu CO umgesetzt. Die Bildung von festem Kohlenstoff C_s , nämlich Ruß, wird begünstigt. Die Partikelemission ist das Resultat aus Rußbildungs- und Rußoxidationsvorgängen. Bei vorgemischten Flammen sind beide Prozesse der globalen Verbrennungstemperatur unterworfen [12]. In Abbildung 2.7 ist die Abhängigkeit des Rußvolumenbruchs f_v von der Verbrennungstemperatur und dem C/O-Verhältnis dargestellt.

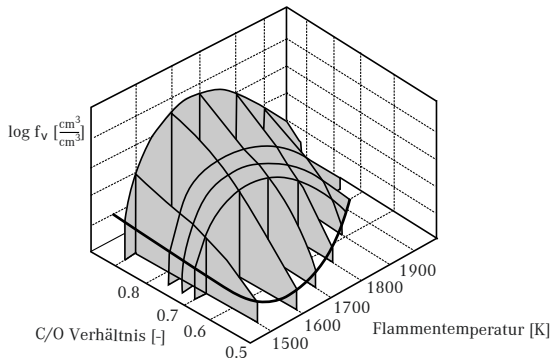


Abbildung 2.7: Abhängigkeit der Rußbildung bei vorgemischten Flammen von der Verbrennungstemperatur und dem C/O-Verhältnis [42]

Bei Temperaturen oberhalb 1800 K und unterhalb 1450 K kann eine rußarme Verbrennung unter unterstöchiometrischen Luftverhältnissen stattfinden [12]. Niedrige Temperaturen gehen einher mit einer geringen Bildungsreaktion des Rußes. Ab 1600 K steigt die Rußoxidationsrate

stärker als die Rußbildungsrate an, was die Abnahme des Rußvolumenbruchs f_v bei steigender Temperatur verursacht. Der Rußvolumenbruch f_v weist sein Maximum bei Temperaturen zwischen 1500 K und 1700 K auf [42]. Bei motorischer Verbrennung stellt die Zeit einen weiteren Einflussfaktor dieser Abhängigkeit dar. Während zu Beginn der Verbrennung die Rußbildung der Temperatur unterworfen ist, hängt zum Ende der Verbrennung die Rußoxidation fast ausschließlich von der Temperatur ab.

Eine brennende Kerze stellt ein vereinfachtes Beispiel für die Rußbildung bei nicht-vorgemischter Verbrennung dar, in der das Luftverhältnis von $\lambda = 0$ auf der Achse der Brennstoffströmung bis zu $\lambda \rightarrow \infty$ im fließenden Oxidationsmittel variiert (siehe Abbildung 2.8).

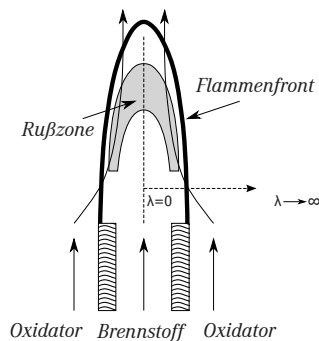


Abbildung 2.8: Darstellung der Flamme einer Kerze mit diffusiver Verbrennung

Die diffusive Flamme brennt ohne Luftvormischung. Der zur Verbrennung notwendige Sauerstoff diffundiert über den Flammenrand in die Flamme hinein. Die chemischen Reaktionen entstehen entlang der Trennung von Brennstoff- und Luftstrom. Die Rußbildung findet in der Nähe der Reaktionszone statt, wo die höchsten Temperaturen zu finden sind. In Diffusionsflammen sind der zeitliche Ablauf der Mischungsvorgänge und die Flammentemperatur die wichtigeren Randbedingungen für die Rußbildung. Mit steigender Temperatur nimmt die Rußbildung kontinuierlich zu [12]. Im Gegensatz zur vorgemischten Verbrennung kann die Rußoxidation nahezu vernachlässigt werden.

Zahlreiche Untersuchungen [13, 41, 47] zeigen eine nahezu quadratische Abhängigkeit der Rußbildung vom Druck bis zu 10 bar. Die Korrelation besteht sowohl in vorgemischter als auch in diffusiver Verbrennung. Dies bedeutet, dass Flammen bei Überdruck eine ausgeprägtere Rußbildung als atmosphärische Flammen aufweisen. Die Zunahme der Rußkonzentration resultiert aus einer Erhöhung der Partikelanzahl bei gleichzeitiger Verringerung des Partikeldurchmessers [49].

Brennstoffeinfluss

Die Neigung zur Rußbildung und -oxidation verschiedener Kohlenwasserstoffe ist stark unterschiedlich. Abbildung 2.9 zeigt eine Klassifizierung vereinfachter Molekülstrukturen und deren Rußneigung.

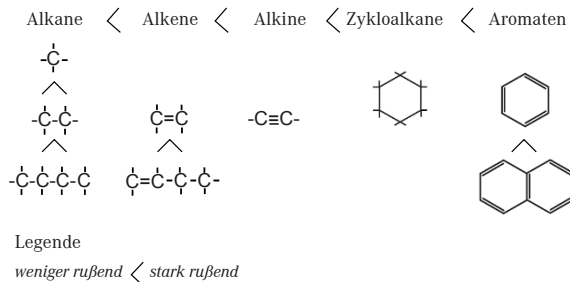


Abbildung 2.9: Sättigungsgrad und räumliche Darstellung azyklischer und aromatischer Kohlenwasserstoffe und deren Rußneigung [47, 82]

Die azyklischen Kohlenwasserstoffe enthalten neben den Alkanen, welche nicht über Doppelbindungen verfügen, die Alkene, mit einer oder mehreren Doppelbindungen sowie die Alkine mit einer Dreifachbindung. Die Zykoalkane bilden ringförmige, gesättigte Kohlenwasserstoffe. Untergeordnet in dieser Gruppe befinden sich die Aromaten. Benzol (C_6H_6) ist das Grundmolekül dieser zyklischen aus 6 C-Atomen mit 3 Doppelbindungen bestehenden Kohlenwasserstoffe.

Der Sättigungsgrad zwischen den Kohlenstoffatomen eines Moleküls beeinflusst die Rußneigung. Ein Kohlenstoffmolekül ist gesättigt, wenn alle Valenzen der Kohlenstoffatome ausgeschöpft sind. Es können durch Additionsreaktionen keine zusätzlichen neuen Atome oder Atomgruppen aufgenommen werden. Diese Verbindungen werden als Alkane bezeichnet. Ungesättigte Kohlenwasserstoffe wie Alkene oder Alkine tragen wesentlich mehr zur Rußbildung bei als gesättigte Verbindungen, die stabiler und weniger reaktiv sind. Die Bildung polyzyklischer aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK), welche die wichtigsten Rußvorläufermoleküle sind, erfolgt durch die Polymerisation des Benzolringes. Sie bilden sich bevorzugt aus aromatischen Verbindungen, da deren niedriges Energieniveau stabilisierend wirkt. Daher weisen aromatische Kohlenwasserstoffe die höchste Tendenz zur Rußbildung auf. Ebenso nimmt mit zunehmender Molekülgröße die Neigung zur Rußbildung zu.

Die Kraftstoffzusammensetzung hat auch einen Einfluss auf die Rußoxidation. Kohlenwasserstoffe, welche in ihrer Molekülstruktur mehrere Sauerstoffatome gebunden haben, begünstigen die Rußoxidation [82]. Der entstandene Ruß während der Verbrennung von sauerstoffhaltigen Brennstoffen wird bereits oxidiert, bevor die OH-Radikale zum Oxidationsprozess beitragen können. Dies führt zu einer starken Reduktion der Partikelemission bei Zumischung von sauerstoffhaltigen Brennstoffen.

2.2.4 Partikelemission bei Ottomotoren mit Direkteinspritzung

Bei Ottomotoren mit Direkteinspritzung besteht prinzipiell die Gefahr erhöhter Partikelemission gegenüber Motoren mit Saugrohreinspritzung. Durch die direkte Einspritzung von Kraftstoff in den Brennraum wird die Gemischaufbereitung zeitlich limitiert. Dies führt dazu, dass unterstöchiometrische Gemischanteile oder flüssige Kraftstoffphasen von der Flammenfront erfasst werden können. So wird bei nicht-vorgemischten Flammen oder unterstöchiometrischen vorgemischten Flammen die Brennstoffpyrolyse durch hohe Temperaturen und Sauerstoffmangel gefördert. In diesen Zonen findet die Bildung erster Rußvorläufer statt.

Die Direkteinspritzung bietet jedoch Freiheitsgrade, um die Partikelemission durch innermotorische Maßnahmen zu reduzieren. Diese können in zwei Hauptentwicklungsfelder unterteilt werden. Einerseits kann eine optimierte Brennverfahrensauslegung das Grundniveau der Partikelemission minimieren. Hierbei liegt das Ziel in der Vermeidung einer Kraftstoffbenetzung von Bauteiloberflächen [1, 121, 123, 149]. Dies kann durch die räumliche Anordnung der Einspritzdüse und der Zündkerze, die Brennraumform, die Einspritzstrahlgeometrie sowie durch die Richtung und Intensität der Ladungsbewegung verwirklicht werden. Die verfahrenstechnischen Maßnahmen werden im Folgenden beschrieben und sind Gegenstand dieser Arbeit.

Einspritzstrahlgeometrie

Zerstäubung und Einspritzstrahlgeometrie eines Injektors sind zwei Faktoren, welche die Neigung zur Rußbildung direkt beeinflussen [9, 60, 108, 131, 148].

Die Form des Einspritzstrahls ist durch seine axiale und radiale Penetration gekennzeichnet. Insbesondere bei kurzhubigen Motoren können Einspritzungen mit einer großen Eindringtiefe zu einer Benetzung des Kolbenbodens mit Kraftstoff führen. Dieser unerwünschte Effekt kann durch einen hohen Zerstäubungsgrad entgegengewirkt werden. Kleinere Tropfendurchmesser weisen eine verkürzte Verdampfungsdauer auf, was zu einer verbesserten Vermischung von Luft und Brennstoff führt. Dadurch wird die Kraftstoffbenetzung der Brennraumwände und somit die Wahrscheinlichkeit diffusiver Flammen auf dem Kolbenboden minimiert.

Zusätzlich wird eine ausreichende radiale Penetration angestrebt. Infolge einer großen Strahlausbreitung wird der Lufteintrag in die Kraftstoffwolke intensiviert. Dies führt zu einer Verbesserung des Verdampfungsverhaltens und Beschleunigung der Gemischbildung. Dadurch ergeben sich im örtlichen Umfeld des Einspritzstrahles weniger unterstöchiometrische Gemischzonen und flüssige Kraftstoffanteile. Der maximale Strahlkegelwinkel soll jedoch geometrisch so begrenzt werden, dass keine Benetzung des Brennraumdachs oder der Auslassventile während einer Kompressionseinspritzung stattfindet.

Im Abschnitt 5.2 wird die Abhängigkeit zwischen der Einspritzstrahlgeometrie und der innermotorischen Rußstrahlung untersucht. Hierfür wird der mit endoskopischem Zugang Vierzylindermotor verwendet.

Ladungsbewegung

Durch die Strömungsstruktur ergibt sich eine Wirkkette von der Gemischbildung und Verbrennung bis zu den simultan ablaufenden Rußbildungs- und Oxidationsmechanismen.

Beim strahlgeführten Magerbrennverfahren mit Injektoren mit Mehrlochdüse stellten Nauwerk et al. [106] bei den Einspritzvorgängen während der Kompressionsphase einen Einfluss der Strömungsstruktur auf die Einspritzstrahlgeometrie und den Homogenisierungsgrad fest. Abhängig vom Turbulenzniveau stellen sich unterschiedliche Gemischzusammensetzungen ein. Dadurch können lokal unterstöchiometrische Gemischzonen entstehen, was wiederum den Anteil der diffusiven Verbrennung und somit die Rußneigung erhöht. Im Gegensatz dazu konnte eine weitere Untersuchung beim strahlgeführten Magerbrennverfahren mit Piezo-Injektoren keinen Einfluss der Ladungsbewegung auf die Rußbildung nachweisen [109]. Die vom Einspritzstrahl induzierte Strömung während der Kompressionsphase spielt eine dominierende Rolle auf die Gemischbildung, sodass die Ladungsbewegung erst in einer späteren Phase des Verbrennungsablaufs von Bedeutung ist.

Im homogenen Motorbetrieb mit Piezo-Injektor stellten Dageforde et al. [23] einen wesentlichen Einfluss der Ladungsbewegungsintensität auf die Verdampfung und Homogenisierung des

eingespritzten Kraftstoffs fest. Hierbei ist eine intensive Zylinderinnenströmung wichtig, um die Gemischbildung zu unterstützen und so diffusive Verbrennung infolge Kraftstoffanlagerungen an der Brennraumwand oder den Einlassventilen zu vermeiden.

Insgesamt ergeben sich verschiedene Anforderungen an die Ladungsbewegung, um die Partikelemission zu minimieren. Das Ziel besteht darin, die Ladungsbewegung als Unterstützung für die Gemischbildung zu nutzen und gleichzeitig eine Kraftstoffbenetzung von Brennraumoberflächen zu vermeiden. Gelangen Kraftstofftropfen durch die generierte oder die unzureichende Ladungsbewegung auf den Kolbenboden oder die Brennraumwände, verdampfen diese nicht in ausreichendem Maße vor dem Zündzeitpunkt [23]. Während der Expansionsphase wird der Verbrennungsablauf durch die Ladungsbewegung, die beim Zerfall eine Turbulenz erzeugt, auch beeinflusst. Zu diesem Zeitpunkt überwiegt die Rußoxidation. Für eine effektive Rußoxidation sind die Mischungsvorgänge zur Erzielung einer ausreichenden lokalen Sauerstoffkonzentration maßgeblich [55]. Dieser Prozess kann durch ein erhöhtes Turbulenzniveau unterstützt werden. Bis zum Ende der Verbrennung soll eine ausreichend hohe Turbulenz vorhanden sein, um gute Oxidationsbedingungen sicherzustellen. Im Abschnitt 5.3 wird die Korrelation zwischen der Ladungsbewegung und der Partikelemission durch die Änderung der einlassseitig erzeugten Zylinderinnenströmung untersucht und statistisch bewertet.

Einspritzstrategie und Brennraumtemperatur

Zusätzlich ergibt sich durch die erweiterten Einspritzmöglichkeiten des Piezo-Injektors ein zusätzliches Reduktionspotenzial der Partikelemission [37, 151, 93, 123, 128]. Hierzu kann im Homogen- und im Schichtbetrieb durch den Einspritzzeitpunkt und die Aufteilung der Einspritzvorgänge die Gemischbildung verbessert werden. Durch die Mehrfacheinspritzung wird das Entflammungsfenster verlängert und eine bessere Durchmischung des Kraftstoffs mit dem Brennraumgas erreicht. Eine lange Gemischbildungszeit durch ein frühes Einspritzende erhöht den Anteil vorgemischter Verbrennung im Verhältnis zur diffusiven Verbrennung.

Im Schichtbetrieb kann eine Variation des Einspritzzeitpunkts jedoch mit mehreren, teilweise gegenläufigen physikalischen Effekten auf die Partikelemission verbunden sein. Bei einer späteren Einspritzung befindet sich der Kolben näher am oberen Totpunkt. Die Wahrscheinlichkeit, dass die Kolbenoberfläche von flüssigem Kraftstoff getroffen wird, steigt. Eine spätere Einspritzung bedeutet auch einen höheren Gegendruck und hierdurch eine höhere Gastemperatur im Brennraum, welche den Strahlzerfall und die Verdampfung unterstützen. Die gegenseitigen Einflüsse im Schichtbetrieb werden im experimentellen Abschnitt 5.1 näher erläutert.

Neben der Einspritzstrategie beeinflusst die Motortemperatur die Neigung zur Rußbildung. Dem Kraftstoff wird die notwendige Verdampfungsenthalpie aus der Umgebung zugeführt. Die Energiezufuhr erfolgt über das vorhandene Brennraumgas und die Bauteiloberflächen über Wärmestrahlung und Konvektion. Beide Prozesse benötigen zur Übertragung der Energie einen treibenden Temperaturgradient, welcher im kalten Motorbetrieb gering ist. Bei niedrigen Motortemperaturen findet dementsprechend eine langsamere Kraftstoffverdampfung statt. Es besteht auch die Gefahr des Auftragens von flüssigem Kraftstoff auf angrenzende Bauteiloberflächen, der anschließend sehr langsam verdampft und in einer Diffusionsflamme verbrennt. Zusätzlich wird die Rußoxidation erschwert, da das Vorhandensein von oxidativen Radikalen und ausreichend hoher Temperatur nicht gegeben ist.

Partikelgrößenverteilung bei Ottomotoren

Während die emittierte Partikelmasse- und -anzahlkonzentration von Verbrennungsmotoren einer gesetzlichen Begrenzung unterliegen, besteht für die Partikelgröße keine Limitierung. Die gesundheitliche Wirkung eines Partikelkollektivs korreliert jedoch nicht mit ihrer Gesamtmasse, sondern mit deren Gesamtoberfläche, welche wiederum quadratisch proportional zum Partikeldurchmesser ist. Bei gleicher Gesamtmasse weisen kleine Partikel, aufgrund ihrer verhältnismäßig höheren Anzahlkonzentration, eine größere Gesamtoberfläche im Vergleich zu größeren Partikeln auf.

Zur Charakterisierung der Partikelgrößenverteilung wird der sogenannte äquivalente Durchmesser D_p verwendet. Diese Größe wird als ein sphärischer Partikeldurchmesser mit einer Einheitsdichte von $1000 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ ermittelt. Anhand dessen werden vier verschiedene Größenklassen bei Partikeln unterschieden [68]:

- $2,5 < D_p < 10 \mu\text{m}$: Grobe Partikel (PM_{10})
- $D_p < 2,5 \mu\text{m}$: Feine Partikel ($\text{PM}_{2,5}$)
- $D_p < 0,1 \mu\text{m}$: Ultrafeine Partikel
- $D_p < 0,05 \mu\text{m}$: Nanopartikel

Die Grenzen der jeweiligen Klassen sind nicht fest definiert und ergeben sich aus der vorhandenen Literatur [68, 163]. Eine beispielhafte Partikelgrößenverteilung mit allen vier Größenklassen ist in Abbildung 2.10 dargestellt.

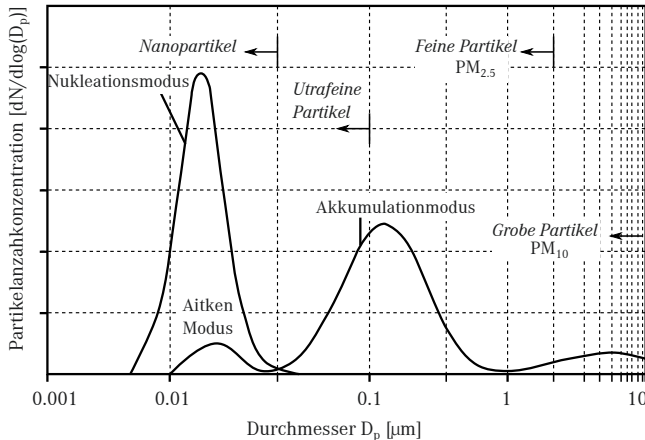


Abbildung 2.10: Repräsentative Partikelgrößenverteilung nach [68] und [127]

Die Partikelkonzentration ist von wenigen bis zu tausend Nanometern über ein kontinuierliches Größenspektrum verteilt. Jeder Durchmesser D_p , bei dem ein Maximum der Partikelanzahlkonzentration auftritt, wird als Modalwert oder Modus bezeichnet. Je nach Anzahl der Maxima wird die Partikelgrößenverteilung als multimodal (mehrgipflig) oder unimodal (eingipflig) bezeichnet. Auf dem Gebiet der Aerosolphysik werden die Partikel in vier Modi eingeteilt:

Nukleations-, Aitken-, Akkumulations- und Grobstaubmodus. Die Klassifizierung erfolgt nach der Größe, dem Alter und den Entstehungsmechanismen der Partikel.

Bei der Partikelgrößenverteilung, entstanden aus einer motorischen Verbrennung, wird zwischen dem Nukleations- und Akkumulationsmodus unterschieden. Der Nukleationsmodus enthält Partikel bis zu einer Größe von ca. 50 nm [68]. Deren Lebensdauer in der Atmosphäre beträgt nur wenige Stunden, da sie sehr schnell durch Koagulationsprozesse von anderen Partikeln aufgenommen werden. In der Regel ist ein Wachstum über den Akkumulationsmodus eingeschlossen [68, 163]. Akkumulationspartikel ordnen sich in einem Größenbereich zwischen 50 und 100 nm. Der Aitken- und Grobstaubmodus entstehen durch mechanische oder atmosphärische Prozesse und werden im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter berücksichtigt. Die ottomotorische Partikelemission weist einen charakteristischen bimodalen Verlauf mit einer asymmetrischen Verteilung, zentriert bei kleineren Durchmessern (40-80 nm), auf [44, 104, 113]. Diese Beobachtung gilt sowohl für die überstöchiometrische als auch für die stöchiometrische Verbrennung.

Die Verteilung der Partikelkonzentration über dem Größenspektrum ist stark asymmetrisch, weshalb keine Normalverteilung verwendet werden kann. Eine Variable x ist normal verteilt, wenn sie durch ihr arithmetisches Mittel μ und ihre Standardabweichung σ mathematisch beschreibbar ist. Diesbezüglich bietet ein lognormales Modell eine bessere Ausgangsbasis. Die Partikelanzahlkonzentration (Variable x) ist lognormal verteilt, weil ihr Verlauf $\log(x)$ eine Normalverteilung aufweist. Ihr arithmetisches Mittel μ entspricht dem mittleren Anzahldurchmesser CMD (Count Median Diameter). Diese Kenngröße bezeichnet den Durchmesser D_p , bei dem die eine Hälfte der Partikel kleiner und die andere Hälfte größer ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Partikelanzahlkonzentration durch die logarithmischen Normalverteilung $\frac{dN}{d\log(D_p)}$ über dem Durchmesser D_p mathematisch beschrieben [44, 46, 93]. $\frac{dN}{d\log(D_p)}$ stellt eine normalisierte Partikelanzahl per logarithmischem Größenintervall $d\log(D_p)$ und Luftvolumen dar, die in Gl. 2.16 formuliert wird.

$$\frac{dN}{d\log(D_p)} = \frac{N_{\text{Tot}}}{\sqrt{2\pi}\ln(\sigma_g)} \exp\left(-\frac{(\ln(D_p) - \ln(\text{CMD}))^2}{2(\ln(\sigma_g))^2}\right) \quad (2.16)$$

N_{Tot} ist die gesamte Anzahlkonzentration des zu messenden Partikelkollektivs mit einer definierten Größe D_p . $\text{CMD}(\mu)$ und $\sigma_g(\sigma)$ stellen den mittleren Anzahldurchmesser und die geometrische Standardabweichung der Größenverteilung dar.

Partikelemissionsuntersuchungen an einem Ottomotor
mit Benzindirekteinspritzung und aufgeladenem
Magerbetrieb

Torruella, M.C.

2017, XXIV, 143 S. 86 Abb., 30 Abb. in Farbe., Softcover

ISBN: 978-3-658-17186-5