

# Abschlussbericht zum Förderantrag an die Friedrich-und-Elisabeth-Boysen-Stiftung

## **Titel:**

## **Katalytischer Brenner für ein wärmeintegriertes Motorabgasreinigungssystem**

### **Antragsteller:**

Prof. Dr.-Ing Ulrich Nieken (federführend)  
Institutsdirektor  
Tel. (0711) 685 85230  
Mail: [nieken@icvt.uni-stuttgart](mailto:nieken@icvt.uni-stuttgart)

gemeinsam mit  
Prof. Dr.-Ing. Gerhart Eigenberger  
Emeritus

Institut für Chemische Verfahrenstechnik  
der Universität Stuttgart  
Böblingerstr. 72  
70199 Stuttgart

### **Projektleiterin:**

Dr.-Ing. Ute Tuttlies  
Leiterin Arbeitsgebiet Motorabgasreinigung  
Tel. (0711) 685 85216  
Mail: [ute.tuttlies@icvt.uni-stuttgart.de](mailto:ute.tuttlies@icvt.uni-stuttgart.de)

### **Bearbeiter:**

Dipl.-Ing. Jens Bernnat  
Tel. (0711) 685 85247  
Mail: [bernnat@icvt.uni-stuttgart.de](mailto:bernnat@icvt.uni-stuttgart.de)

### **Kurzfassung:**

Inhalt dieses Projektberichts sind Arbeiten zur Entwicklung und Erprobung von Dieselmotorsystemen, die als aktives Regelement in wärmeintegrierten, multifunktionalen Dieselmotorsystemen eingesetzt werden sollen. Bei diesen Systemen werden Temperatur und Betriebsbedingungen unabhängig vom Motorbetrieb optimal eingestellt, womit sie sich insbesondere für die Erfüllung künftiger Abgasgrenzwerte eignen.

Im Rahmen des Projekts wurden vier Brennerkonzepte entwickelt und erprobt; ein Brennerkonzept wurde in Verbindung mit einem Wärmetauscher-Abgasfiltersystem getestet. Bei allen Konzepten wird Dieselmotorkraftstoff auf einer kommerziellen Glühkerze vorverdampft und anschließend in einer Brennkammer mittels einer Drallströmung mit Luft gemischt. Bei Kaltstart wird dieses Gemisch unter Sauerstoffüberschuss homogen gezündet und verbrannt (totale Oxidation, TOX, mit Luftüberschuss  $\lambda > 1$ ). Nach erfolgtem Kaltstart wird zur Erzeugung eines reduzierenden Brennerabgases das Brennstoff-Luftgemisch bei Sauerstoffunterschuss an einem im Brenner integrierten Katalysator partiell oxidiert (POX-Betrieb mit  $\lambda < 1$ ). Das reduzierende Brennerabgas wird zur direkten Verbrennung auf dem Motorabgaskatalysator oder zur periodischen Reduzierung eines  $\text{NO}_x$ -Speicherkatalysators benötigt.

Hauptschwierigkeit bei der Konzeptentwicklung war die Vermeidung einer unzulässigen Überhitzung des POX-Katalysators, insbesondere beim Übergang vom TOX- in den POX-Betrieb. Eine Überhitzung war immer dann zu befürchten, wenn die homogene Verbrennung bereits vor dem POX-Katalysator zündete oder wenn der POX-Katalysator mit einem Luftverhältnis  $\lambda > 0.25$  bis  $0.3$  betrieben wurde. Zur Reduzierung der Katalysatortemperatur im POX-Betrieb wurde der Brennerluft Motorabgas zugemischt. Als besonders geeignet erwies

sich die Brennerversion 4, bei der der Brennraum für den Kaltstart und die homogene Verbrennung mit  $\lambda > 1$  hinter dem POX-Katalysator angeordnet war. Dieser Brenner zeichnete sich zudem durch ein besonders schnelles Kaltstartverhalten aus.

## 1. Problemstellung, Stand der Technik

Dieselmotoren und mager betriebene Ottomotoren besitzen gegenüber konventionellen ( $\lambda$ -geregelt) Otto-Motoren einen deutlichen Vorteil aufgrund ihres geringeren Kraftstoffverbrauchs im unteren und mittleren Lastbereich. Ihr Nachteil sind die Stickoxidemissionen sowie bei Dieselmotoren die Rußbildung. Nachdem innermotorische Maßnahmen nicht mehr ausreichen, um die verschärften Abgasgrenzwerte einzuhalten, sind Dieselrußfilter mittlerweile Standard. Mit weiter verschärften Abgasgrenzwerten werden demnächst auch  $\text{NO}_x$ -Umwandlungsverfahren auf Basis der selektiven katalytischen Reduktion (SCR) oder von  $\text{NO}_x$ -Speicherkatalysatoren (NSC) unabdingbar. Damit nehmen Komplexität, Aufwand und Kosten der Abgasreinigung für Dieselfahrzeuge so drastisch zu, dass sie die Konkurrenzfähigkeit dieser energetisch effizientesten Motoren ernsthaft gefährden können.

Abb. 1 zeigt als Beispiel das Schema eines Dieselmotors mit Abgasturbolader und Abgasrückführung sowie den für die Entfernung/Umwandlung der Abgasschadstoffe notwendigen Komponenten im Abgasstrang.

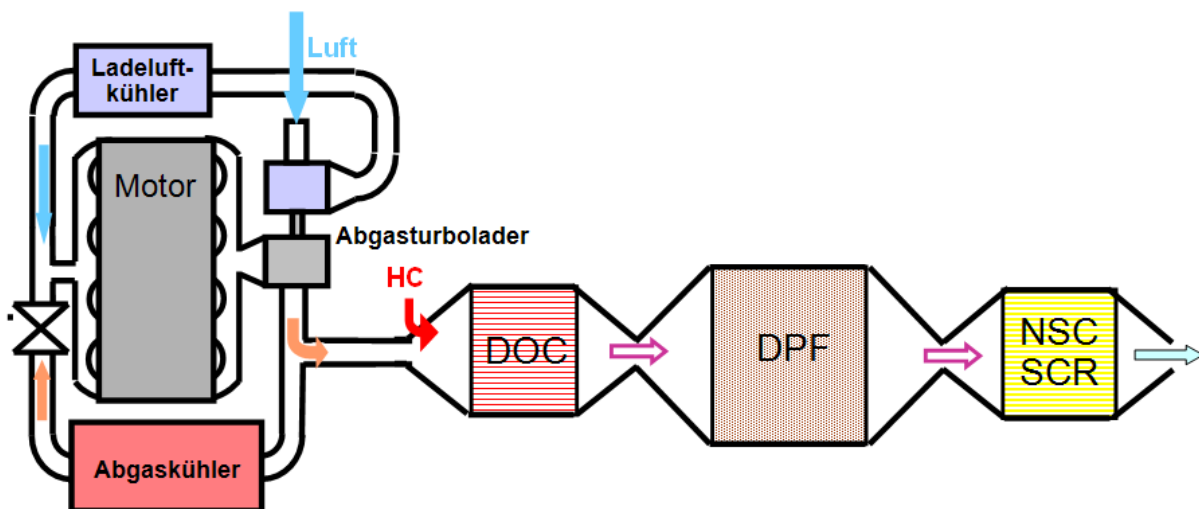


Abb. 1: Schema eines Dieselmotors mit Abgasturbolader und Abgasrückführung sowie den für eine Abgasreinigung künftig notwendigen Reinigungsstufen DOC (Diesel-Oxidationskatalysator, DPF (Dieselpartikelfilter) und NSC (NO<sub>x</sub>-Speicherkatalysator) oder SCR (selektive katalytische Reduktion).

Ein Hauptproblem dieser oder ähnlicher Anordnungen der Abgasreinigung ist die Temperaturführung. Während im Schwachlastbereich die Temperatur von Dieselausgas häufig nur zwischen 100 und 200 °C beträgt, benötigen der Dieseloxidationskatalysator (DOC) sowie die NO<sub>x</sub>-Entfernung mittels NO<sub>x</sub>-Speicherkatalysator (NSC) oder SCR Temperaturen zwischen 250-350 °C und ein (thermischer) Rußabbrand auf dem Dieselrußfilter Zündtemperaturen oberhalb 600 °C. Für einen kontinuierlichen Rußabbrand mittels NO<sub>2</sub> nach dem sog. CRT<sup>TM</sup>-Effekt wären etwa 300 °C erforderlich. Beim

Einsatz des Speicherkatalysators muss dieser in Abständen von Minuten durch ein kurzzeitig stark angefettetes, reduzierendes Abgas regeneriert werden. Außerdem ist in größeren Abständen (einige 1000km) eine Schwefelregeneration bei ca. 700°C erforderlich. Allerdings liegt die zulässige Maximaltemperatur des Speicherkatalysators bei ca. 750°C, weshalb er gelegentlich vor dem DPF angeordnet wird, um eine Temperaturschädigung beim Rußabbrand zu vermeiden.

Um die erforderlichen Abgastemperaturen zu erreichen, muss zusätzlich Kraftstoff im Zylinder oder im Abgasstrang eingespritzt und auf dem DOC nachverbrannt werden. Auf dem gleichen Weg wird auch die kurzzeitig notwendige reduzierende Abgaszusammensetzung für die NSC-Regeneration eingestellt. Beides ist mit einem deutlichen Kraftstoffmehrverbrauch verbunden, was den Verbrauchsvorteil dieser Motoren reduziert.

Die im Rahmen des Projekts durchgeführten Arbeiten zur Entwicklung eines katalytischen Kraftstoffbrenners sind Teil der Forschungsarbeiten des Instituts zur Entwicklung neuer Abgasreinigungskonzepte, mit denen die oben am Beispiel des Dieselmotors genannten Nachteile bisheriger Konzepte durch eine gezielte Prozess- und Wärmeintegration vermieden werden sollen.

## **2 Autonomes, wärmeintegriertes Konzept für die Dieselaabgasreinigung**

Bisher konzentriert sich die Kfz-Industrie bei ihren Anstrengungen zur Erfüllung künftiger Abgasgrenzwerte auf die Verbesserung vorhandener Reinigungsstufen und, wo das nicht ausreicht, auf die Ergänzung um weitere Komponenten („add-on“-Konzept, Abb.1). Dabei erfolgt die notwendige Beeinflussung von Abgastemperatur und -zusammensetzung aus Kostengründen möglichst ausschließlich über die Motorsteuerung.

Demgegenüber wird am Institut ein von der Motorsteuerung unabhängiges Konzept entwickelt, bei dem die verschiedenen Schritte der Abgasreinigung in einer (weitgehend) selbstregulierenden Wärmetauscher-Einheit integriert sind [1-4]. Wie in Abb. 2 schematisch gezeigt, wird das im Kaltstart oder Schwachlastbereich (relativ) kalt eintretende Dieselaabgas durch den Wärmetauscher (HEX) im Gegenstrom zum austretenden heißen Abgas aufgeheizt. Am (heißen) Übertritt des Abgases in den Dieselaabfilter befindet sich ein Oxidationskatalysator (DOC) zur Oxidation von NO zu NO<sub>2</sub>, um im nachfolgenden Filter (DPF) den CRT<sup>TM</sup>-Effekt für den Rußabbrand zu nutzen. Der NSC oder der SCR-Katalysator ist hinter dem Filter am Eingang des Abströmteils des Wärmetauschers untergebracht. Die bei zu kaltem Abgas notwendige Aufheizwärme wird über einen Kraftstoffbrenner eingebracht, der vor oder hinter dem Rußfilter angeordnet ist. Er kann wahlweise oxidierend (reine Wärmezufuhr bei Luftüberschuss) oder reduzierend betrieben werden. Bei reduzierendem Betrieb dienen die unverbrannten Brennerabgase als Reduktionsmittel für die Regeneration des NSC. Mit dem sauerstoffhaltigen Motorabgas vermischt, können sie auch am nachfolgenden (im DPF oder im Wärmetauscher integrierten) Katalysator verbrannt werden, sodass die Wärme direkt vor dem oder in den Rußfilter eingetragen wird.

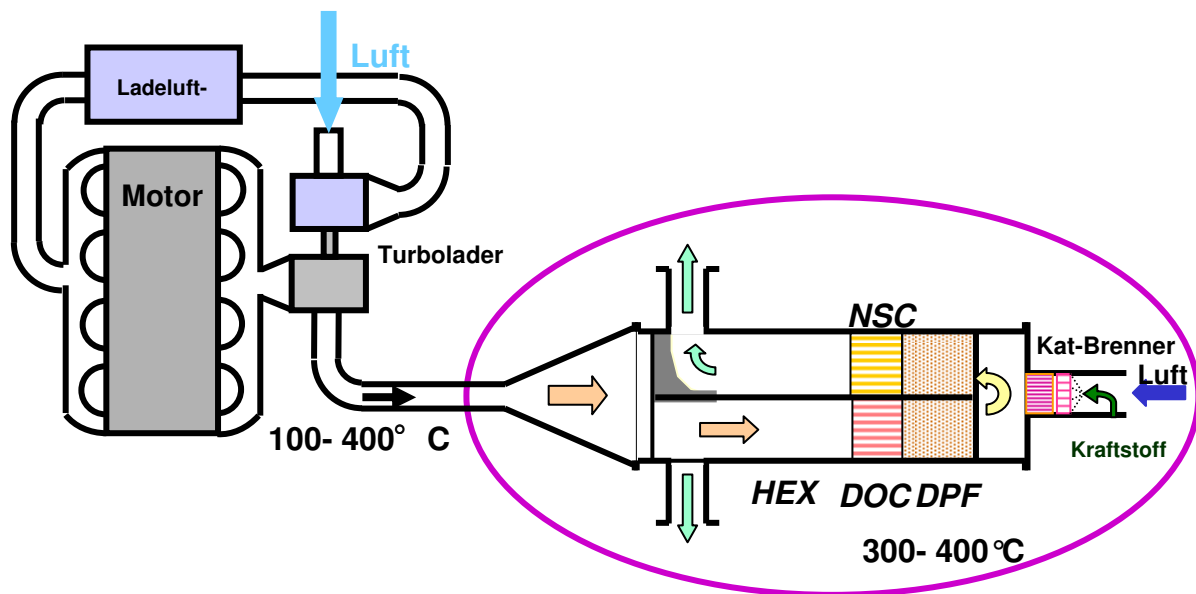


Abb. 2: Wärmeintegrierte Diesel-Abgasreinigungsanlage, bestehend aus Gegenstromwärmetauscher (HEX) und darin an seinem rechten Ende integriertem DOC, DPF, NO<sub>x</sub>-Speicherkatalysator (NSC) sowie einem katalytischen Brenner.

### 3. **Übersicht über die geplanten und durchgeführten Arbeiten**

Ziel des beantragten Projekts war die Entwicklung und Erprobung eines katalytischen Brenners, der gemäß Abb. 2 in der Abgasbehandlungseinheit angeordnet ist. Im Unterschied zu einem thermischen Kraftstoffbrenner (z. Bsp. für die Standheizung) muss der Brenner folgende Bedingungen erfüllen: Er soll ein schnelles und sicheres Ansprungsverhalten besitzen, unter einem großen Lastbereich (geplante Lastspreizung 1:10) sicher arbeiten und dabei zum einen als normaler Brenner unter oxidierenden Bedingungen (Luftzahl  $\lambda > 1$ ) heißes Abgas z. Bsp. für den Kaltstart bereitstellen und zum anderen unter reduzierenden Bedingungen (Luftzahl  $\lambda < 1$ ) bei partieller Oxidation des Kraftstoffs ein CO- und wasserstoffreiches Gas für die NSC-Regeneration bzw. für eine nachfolgende Verbrennung in dem im DPF integrierten Katalysator liefern. Außerdem muss die Verdampfung des Kraftstoffs im Brenner selbst erfolgen, wobei eine verstärkte Rußbildung vermieden werden muss.

Im Rahmen des Projekts sollten zwei unterschiedliche Konzepte verfolgt und erprobt werden. Dabei sollten die Untersuchungen weitgehend experimentell durchgeführt werden, weil für eine ausreichende Simulation der wechselseitigen Einflüsse von Kraftstoffvernebelung und -verdampfung, Tropfenverbrennung sowie homogener und katalytischer Verbrennung zutreffende Modellansätze fehlen.

Konzept 1 sah die Vorverdampfung des Kraftstoffs auf einem elektrisch beheizten Glühstift vor. Auf diesem Konzept lag während der Projektdauer das Hauptaugenmerk. Konzept 2 sah die Vernebelung und vollständige (homogene) Verbrennung eines Teils des Kraftstoffs in einer vorgeschalteten Brennkammer vor. In das heiße

Abgas soll bei Bedarf weiterer Kraftstoff eingedüst, verdampft und am nachfolgenden Katalysator reformiert werden. Dieses Konzept wurde im Rahmen der Industriepromotion Maus [6] am Beispiel der katalytischen partiellen Oxidation von Benzin verfolgt und darum im Rahmen des Projekts nicht vertieft.

Als Katalysatoren haben sich edelmetallbeschichtete Monolith-Katalysatoren als geeignet erwiesen, wie sie als Oxidationskatalysatoren in der Autoabgasreinigung eingesetzt werden. Um die Überhitzung des Katalysatoreintritts zu reduzieren, sollten entweder Katalysatormonolithe mit größerer Wandstärke und verbesserter axialer Wärmeleitung eingesetzt oder eine Kombination aus einer ersten Katalysatorscheibe mit geringer Zellenzahl und einer zweiten Scheibe mit hoher Zellenzahl untersucht werden.

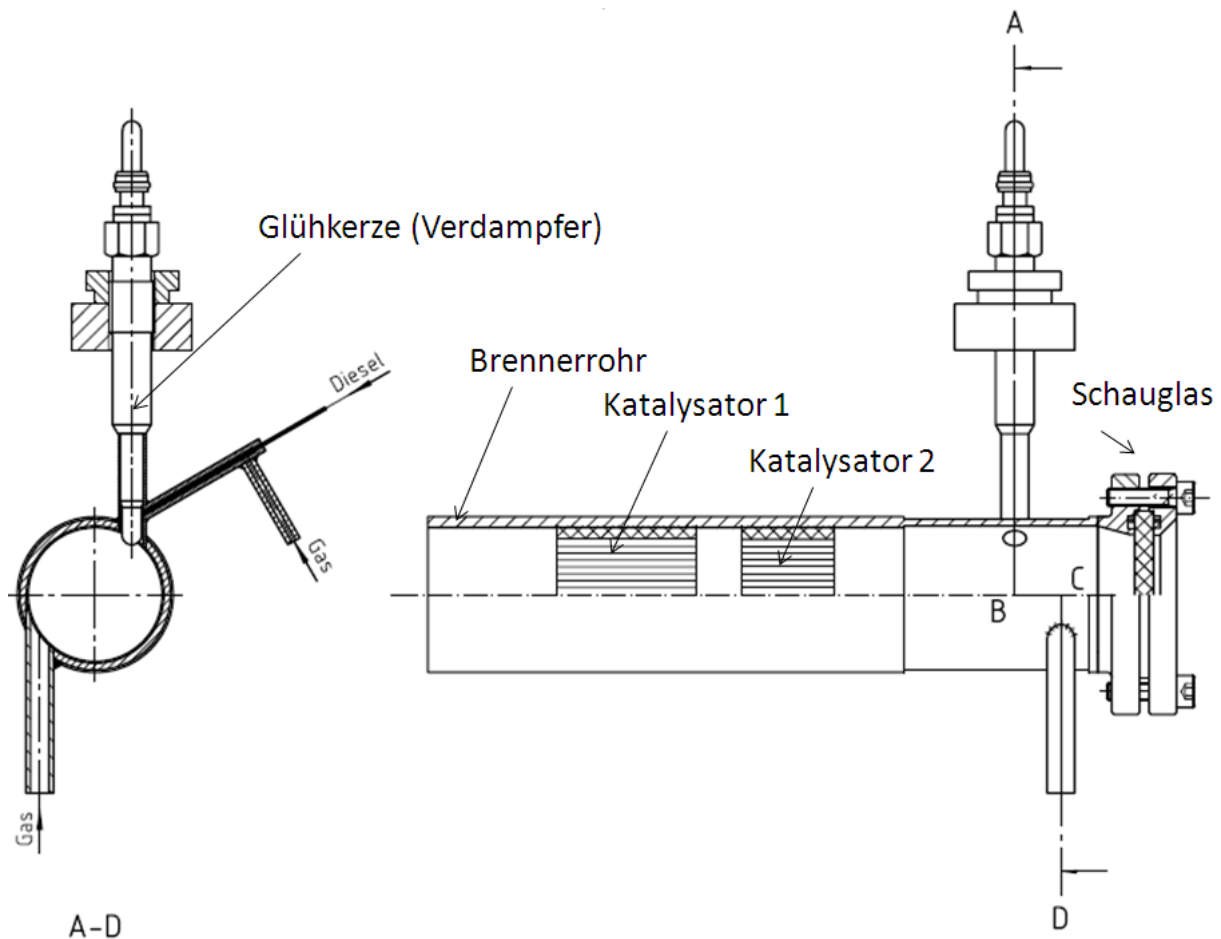
Im Rahmen des Projekts wurden einerseits monolithische Katalysatoren mit geringer Edelmetallbeladung [7], andererseits hochaktive, kommerzielle Katalysatoren eingesetzt. Durch das Beimischen von synthetischem Abgas zur Brennluft konnte die Gefahr der Katalysatorüberhitzung deutlich reduziert werden [8].

Einer der entwickelten Brenner wurde im Rahmen des Projekts an einer Wärmetauscher-Filter-Reaktoreinheit aus Silizium-Karbid (SiC) erprobt [9]. Diese Abgasbehandlungseinheit wurde mit und ohne Abgasbeimischung in den Brenner an einem institutseigenen Kleindieselmotor betrieben.

#### **4. Katalytische Brenner**

In den Experimenten wurden vier verschiedene Brennersysteme aufgebaut und untersucht, die sich durch die Geometrie und die Zufuhr der Kraftstoff- und Gasströme sowie durch die Lage der Zündvorrichtung voneinander unterscheiden. Der Grundkörper ist ein Brennerrohr aus einem hochzunderfestem Stahl (1.4835, AVESTA). Im Brennerrohr sind Brennraum und Katalysator hintereinander angeordnet. Ein Flansch mit Schauglas ermöglicht die Beobachtung des Brennraums und der Anströmseite des Katalysators. In den Brennraum werden die Gasströme (Luft, Abgas) und der verdampfte Diesel tangential zudosiert. Die Dieselverdampfung erfolgt an einer Glühkerze. Durch die tangentielle Einspeisung entsteht eine Drallströmung in Richtung Katalysator, welche zur Vermischung des Diesels mit der Luft führt. Abbildung 3 zeigt den prinzipiellen Aufbau am Beispiel des Brennersystems 1.

In das Brennerrohr mit einem Innendurchmesser von 26 bis 39 mm kann ein inerter oder katalytisch beschichteter monolithischer Wabenkörper eingebracht werden, welcher über eine mineralische Fasermatte zum Rohr abgedichtet und isoliert ist. Neben inerten Scheiben kam ein 3-Wege-Katalysator der Firma Degussa (Typ MLKV 150) mit einer Zelldichte von 400cps (cells per square inch) zum Einsatz. Die Edelmetallbeladung beträgt 100 g/ft<sup>3</sup> Platin und Rhodium mit einem Verhältnis Pt:Rh = 14:1. Außerdem wurden Rhodium- und Rhodium/Cer-beschichtete Katalysatoren mit einer Zelldichte von 400cps eingesetzt. Die Rh-Beladung beträgt bei beiden Katalysatoren 10 g/ft<sup>3</sup> und die Ce-Beladung beim Rh/Ce-Katalysator 405 g/ft<sup>3</sup>.



**Abb. 3:** Aufbau der Dieselkraftstoffbrenner am Beispiel des Brennersystems 1

Des Weiteren wurde von der Firma Umicore ein kommerzieller POX-Katalysator mit 400 cpsi bereitgestellt und in unseren Systemen getestet, der besonders für die katalytische partielle Oxidation von Diesel geeignet ist. Informationen über die Katalysatorzusammensetzung wurden nicht mitgeteilt.

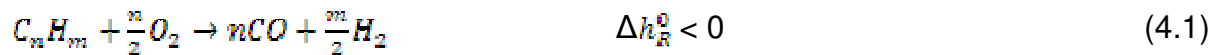
In Abschnitt 4.1 werden die Möglichkeiten zur Erzeugung von Synthesegas aus Kraftstoff sowie die dabei wichtigen Kenngrößen zusammenfassend dargestellt. In Abschnitt 4.2 werden die Brennersysteme näher erläutert und der entwickelte Versuchsaufbau beschrieben. Abschnitt 4.3 enthält thermodynamische Abschätzungen als Grundlage für die Festlegung einer Versuchsmatrix zum Betrieb des Brenners als autothermer Reformier. In Abschnitt 4.4 werden die Hauptergebnisse zusammengefasst. Eine Zusammenfassung sowie ein Ausblick auf weiterführende Arbeiten werden in Abschnitt 4.5 gegeben.

#### **4.1 Kraftstoffverbrennung und Synthesegaserzeugung**

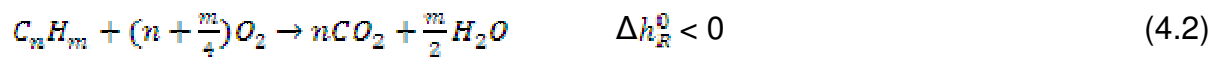
Die gängigsten Verfahren zur Erzeugung eines H<sub>2</sub>- und CO-reichen Gases aus Kohlenwasserstoffen sind die Dampfreformierung (steam reforming, SR), die partielle Oxidation (POX) sowie die Kombination beider Verfahren in der autothermen Reformierung (ATR) [5, 11, 12]. Einen Spezialfall der ATR stellt die so genannte Abgasre-

formierung dar [6], in der Sauerstoff für die POX sowohl aus der Luft wie dem Abgas bereit gestellt wird. Wasser für die Dampfreformierung und CO<sub>2</sub> für die CO<sub>2</sub>-Reformierung wird dagegen mit dem Abgas des Verbrennungsmotors zur Verfügung gestellt. Eine getrennte Mitführung von Wasser im Fahrzeug kann dabei entfallen.

Die partielle Oxidation ist eine unterstöchiometrische Verbrennung, bei der als Produkte Kohlenstoffmonoxid und Wasserstoff entstehen (Glg. 4.1).



Im Vergleich dazu wird bei der totalen Oxidation (TOX) etwa die dreifache Menge an Sauerstoff benötigt, wobei Wasser und Kohlenstoffdioxid entstehen (Glg. 4.2).



Die TOX ist deutlich exothermer als die POX. Sie eignet sich daher besonders zum Starten des katalytischen Brenners und zum schnellen Vorheizen der Abgasreinigungseinheit. Zur Erzeugung eines H<sub>2</sub>- und CO-reichen Produktgases mittels POX muss der Sauerstoffgehalt deutlich reduziert werden. Dabei können neben den in Gln. 4.1 und 4.2 genannten Produkten auch niedrig-molekulare Kohlenwasserstoffen (HC) gebildet werden.

Eine weitverbreitete Kenngröße zur Beschreibung einer vollständigen oder unvollständigen Verbrennung ist die Luftzahl  $\lambda$  gemäß Glg. 4.3. Dabei wird die der Reaktion zur Verfügung gestellte Molmenge an Sauerstoff ins Verhältnis gesetzt zur für die vollständige Oxidation benötigten Molmenge. Die Luftzahl  $\lambda$  nimmt den Wert 1 an, wenn genau die stöchiometrische Menge an O<sub>2</sub> für Reaktion 4.2 bereit gestellt wird.

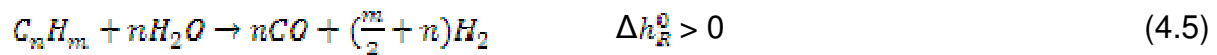
$$\lambda = \frac{\text{vorhandene Luft}}{\text{stöchiometrisch benötigte Luft}} = \frac{\dot{n}_{O_2}}{\dot{n}_{O_2, \text{st}}} \quad (4.3)$$

Zur Beschreibung der partiellen Oxidation eignet sich auch das „Oxygen-Carbon-Verhältnis“, Glg. 4.4, da es bei stöchiometrischer Zusammensetzung der partiellen Oxidation, gemäß Glg. 4.1 gleich eins ist [12,13].

$$\frac{O}{C} = \frac{\text{vorhandener atomarer Sauerstoff}}{\text{vorhandene Kohlenstoffatome im Kraftstoff}} = \frac{\dot{n}_O}{\dot{n}_C} \quad (4.4)$$

Betrachtet man zusätzlich die ATR mit Abgas, so kann es mit dem enthaltene Wasser zur Dampfreformierung kommen (Glg. 4.5). In der stark endothermen Dampfreformierung wird Kohlenwasserstoff in Anwesenheit von Wasser zu Wasserstoff und Kohlenstoffmonoxid reformiert. Die für die Dampfreformierung nötige Energie kann durch die partielle Oxidation bereitgestellt werden. Dadurch werden gleichzeitig die

hohen Temperaturen gedämpft, die bei der partiellen Oxidation auftreten können [5, 15-17]. Die Dampfreformierung läuft jedoch erst ab, wenn der vorhandene Sauerstoff verbraucht ist, was zur Trennung der Reaktionszonen der Oxidations- und der Reformierungsreaktionen führt. Dadurch kann es zur Ausbildung eines Temperaturmaximums („hot spot“) im Bereich des Katalysatoreintritts kommen [13].



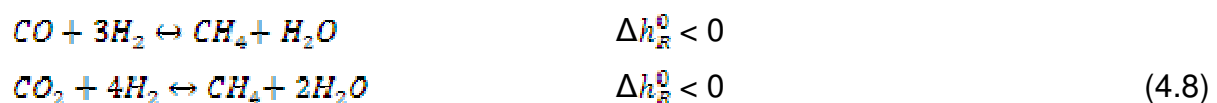
Analog zum O/C-Verhältnis wird für die Dampfreformierung das „Steam-Carbon-Verhältnis“ S/C definiert (Glg. 4.6). Es setzt die Anzahl der Wassermoleküle ins Verhältnis zu den Kohlenstoffatomen des Kraftstoffs. Ein S/C-Verhältnis von eins bedeutet eine stöchiometrische Zusammensetzung für Reaktion 4.5.

$$\frac{S}{C} = \frac{\text{vorhandene Wassermoleküle}}{\text{vorhandene Kohlenstoffatome im Kraftstoff}} = \frac{\dot{n}_{H_2O}}{\dot{n}_C} \quad (4.6)$$

Bei Anwesenheit von Wasser kann zusätzlich eine Gleichgewichtsreaktion, die so genannte die Wassergas-Shift-Reaktion (WGS) (Glg. 4.7) stattfinden. Bei hohen Katalysatortemperaturen liegt das Gleichgewicht dieser leicht exothermen Reaktion auf der Seite des Kohlenstoffmonoxids sowie des Wassers.



Eine weitere Nebenreaktion ist die Methanisierung. Sie läuft mit CO oder mit CO<sub>2</sub> gemäß Glg. 4.8 ab. Bei ausreichend hohen Temperaturen liegt das Gleichgewicht dieser exothermen Reaktion fast vollständig auf der linken Seite, weshalb die Konzentration von CH<sub>4</sub> im Produktgas gering ist.



Aufgrund des im Abgas enthaltenen Kohlenstoffdioxids kann zusätzlich die CO<sub>2</sub>-Reformierung stattfinden (Glg. 4.9).



Die thermische Leistung eines Brenners lässt sich direkt aus dem Heizwert  $H_u$  und dem zugeführten Dieselmassenstrom bestimmen:  $P = \dot{m}_n \cdot H_u$  [kW]. Im Folgenden



wird der Dieselmassenstrom als Kenngröße verwendet. Dabei entspricht ein Dieselmassenstrom von 1 g/min einer Leistung von ca.  $P = 0,7 \text{ kW}$ .

Der Quotient aus dem Volumenstrom der Edukte und dem frei durchströmbaren Katalysatorvolumen ergibt die Raumgeschwindigkeit in 1/h. Sie dient als Maß für die reziproke Verweilzeit der Stoffe im Katalysator. In [10] wird für die partielle Oxidation ein Bereich von 1000 bis 100000 1/h angegeben. Für höhere Kohlenwasserstoffe, worunter auch Diesel fällt, sollte die Raumgeschwindigkeit im unteren Bereich liegen. Es wird allerdings darauf hingewiesen, dass gerade bei der partiellen Oxidation die Raumgeschwindigkeit nur bedingt aussagekräftig für die Auslegung ist, da die Reaktion aufgrund ihrer hohen Geschwindigkeit in einem kleinen Teil des Katalysators stattfindet und so nicht das gesamte Katalysatorvolumen ausgenutzt wird. Sie legt daher nur eine Obergrenze fest, ab der es zu Umsatzeinbrüchen kommt. Ein Überblick über den Stand der Technik von vorgeschlagenen und eingesetzten Dieselmotoren-Systemen auf der Basis der POX ist in [7] gegeben.

#### 4.2 Versuchsanlage und Brennersysteme

In diesem Abschnitt wird der Aufbau der Brennersysteme erläutert und der grundlegende Versuchsaufbau kurz beschrieben. Zudem sind in diesem Abschnitt einige Ergebnisse von Voruntersuchungen dokumentiert.

Die thermische oder katalytische Verbrennung von Kraftstoff erfordert seine vorherige Verdampfung. Diese gestaltet sich besonders bei dem hochsiedenden Dieselmotorenkraftstoff als problematisch, weswegen in den Untersuchungen ein Schwerpunkt auf die Verdampfung und Gemischbildung (Eduktaufbereitung) gelegt wurde [7].

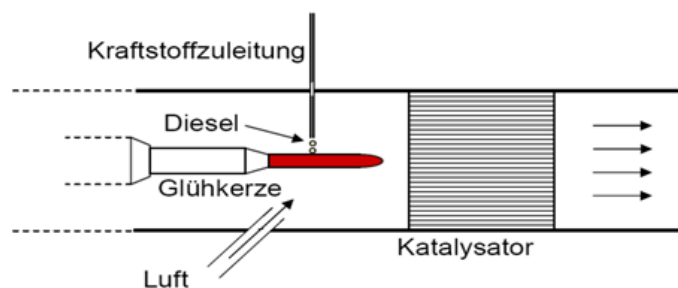


Abbildung 4 zeigt den verfolgten Ansatz schematisch. Kraftstoff wird dabei kontinuierlich über eine Kanüle mit kleinem Querschnitt auf eine kommerzielle Glühkerze aufgebracht; ein zusätzlicher Luftstrom verhindert Kohlenstoffablagerungen auf der heißen Oberfläche (ca.  $1000^\circ\text{C}$ ).

**Abb. 4:** Prinzip der Dieselverdampfung schematisch

Für die Verdampfung des Dieselmotorenkraftstoffes wurde eine kommerzielle, nachglühfähige Glühkerze der Firma Beru (z.B. Typ GN 855) eingesetzt [18]. Aufgrund des stetigen, kleinen Luftstroms und der Oberflächentemperatur von  $600\text{-}1000^\circ\text{C}$  kam es während des Betriebs ( $>200 \text{ h}$ ) zu keinen erkennbaren Ablagerungen. Ein Zusetzen der Kanüle wurde ebenso wenig beobachtet, da diese nicht in Berührung mit der heißen Oberfläche kommt und der kleine Luftstrom sie zusätzlich kühlt.

Demgegenüber wurden Versuche mit kommerziellen sog. Flammglühkerzen der Firma Beru nicht weitergeführt, da sich Ablagerungen in den engen Ringspalten bildeten, die zum vorzeitigen Versagen im Dauerbetrieb führten.

In Abbildung 5 sind die benutzte Glühkerze und die erste Verdampfer-Variante dargestellt. Die Glühkerze weist an der Spitze eine Verjüngung auf. In diesem Bereich besitzt sie nach wenigen Sekunden eine Betriebstemperatur von ca. 1050 °C (ohne Gas- oder Dieselstrom). Bei dem Verdampfer ist über die Spitze ein Dampfrohr geschoben, dem über eine seitliche Zuführung ein geringer Luftstrom (Sekundärluft) von ca. 0,25-1 NI/min eingeleitet wird. In dieser Zuführung sitzt außerdem die Kanüle, durch die der Kraftstoff zudosiert wird. Der Hauptnachteil dieser Verdampfervariante ist, dass sie sich im hinteren Bereich nach ca. einer Minute stark erhitzt und im Dauerbetrieb nicht ohne externe Kühlung auskommt. Die Verdampfung des Diesels erfolgt problemlos und ablagerungsfrei. Die Verdampfer vom Typ 1 wurden bei den Brennervarianten 1,3 und 4 eingesetzt. Dabei wurde der hintere Teil der Glühkerze mit Druckluft gekühlt. Um die elektrische Energie besser zu nutzen, wurde ein zweiter Verdampfer-Typ (Abb. 6) entwickelt. Er besitzt zusätzliche eine Luftzufuhr (Primärluft) von hinten. Dieser Luftstrom kühlt den Einschraubbereich, wobei die Luft gleichzeitig vorgewärmt wird. Dieser Verdampfer-Typ wurde am Brenner Typ 2 eingesetzt.

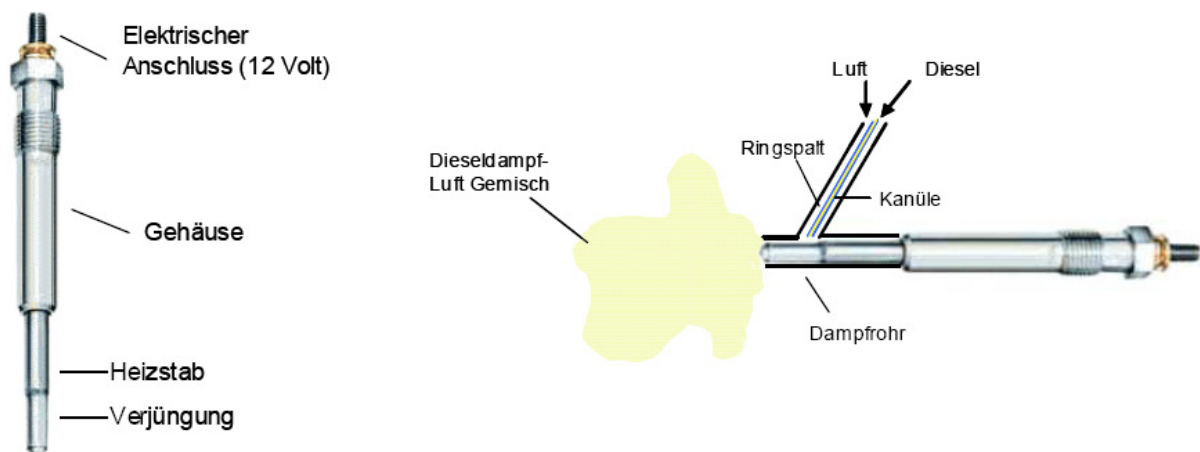


Abb. 5: Glühkerze mit Verjüngung (links) Quelle: Beru AG, schematischer Aufbau des Verdampfers (Typ 1) mit Dampfrohr und Zuführungen (rechts)

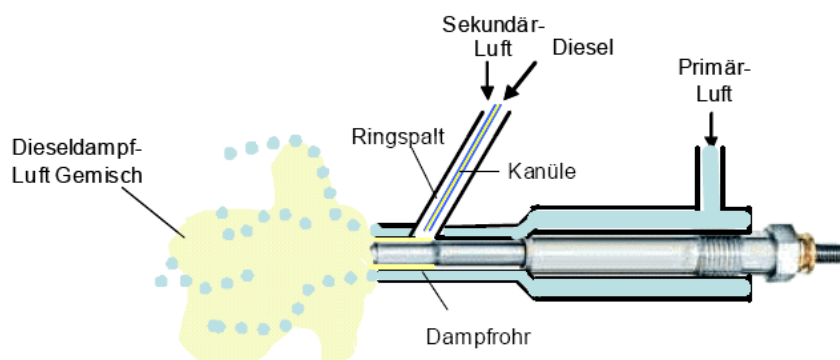
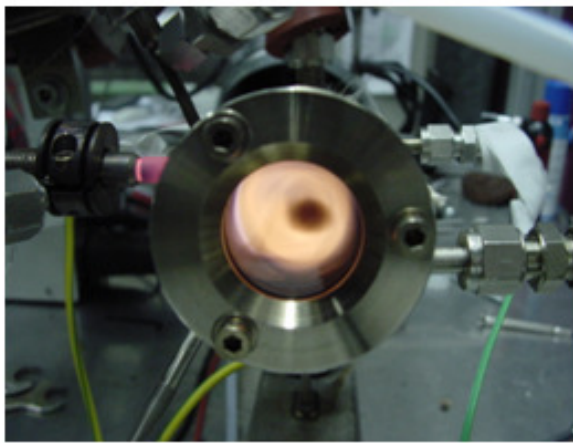


Abb. 6: Aufbau des Verdampfers Typ 2 mit zusätzlicher Primärluftzuführung [7]

Die Verdampfer vom Typ 2 zeigen zwar prinzipiell den gewünschten Effekt der Primärluftvorwärmung. Allerdings kühlt die Glühkerze bei einem hohen Luftdurchsatz zu stark aus um eine vollständige Verdampfung zu gewährleisten. Ein reduzierter Luftdurchsatz führt hingegen zu einer zu hohen Temperatur des Kerzenkörpers sowie zur Selbstzündung des austretenden Kraftstoff-Luftgemischs.

Nach einer vollständigen, ablagerungsfreien Verdampfung ist in der Brennkammer eine möglichst homogene Mischung von Dieseldampf und Luft sicherzustellen. Dabei ist im POX-Betrieb eine Selbstzündung vor dem Katalysator zu vermeiden. Die Vermischung wurde bei allen 4 Brennervarianten mittels einer Drallströmung erzeugt. Die Güte der Vermischung konnte optisch anhand des Brennbildes bzw. des Glühbildes des Katalysators erfasst werden. Abbildung 7 zeigt exemplarisch ein Foto des ersten Brennertyps im homogenen (links) und katalytischen Betrieb (rechts).

#### **Drallströmung im nicht- katalytischen Betrieb**



#### **Homogenes Glühbild des Katalysators**

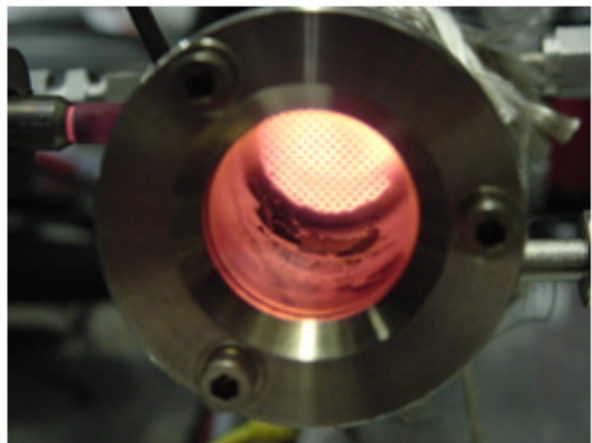


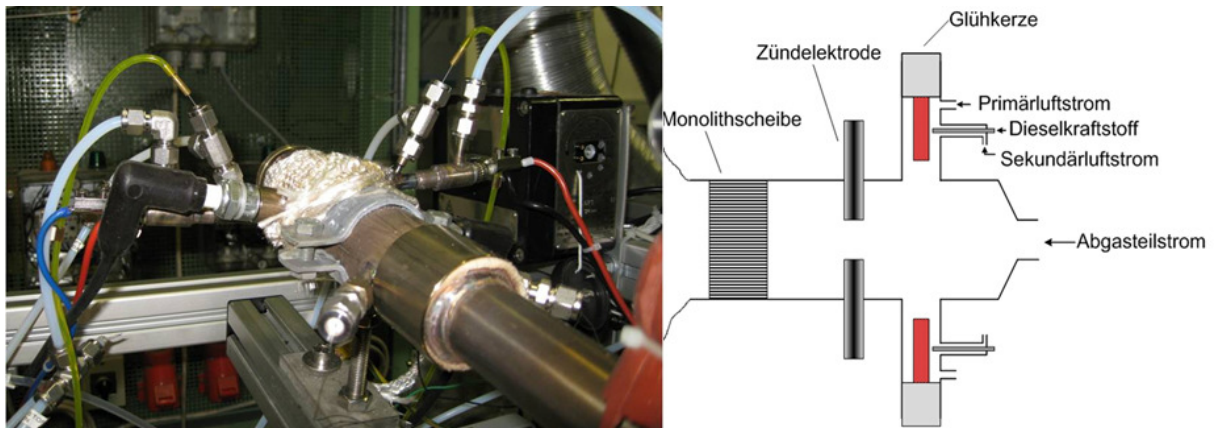
Abb. 7: Brennbild im thermischen (links) und Glühbild im katalytischen (rechts) Betrieb von Brenner Typ 1 [7]

Im Folgenden werden die Unterschiede zwischen den 4 Brennervarianten kurz erläutert. Abbildung 3 zeigt die technische Zeichnung von Brenner Typ 1. Er ist mit einem Verdampfer Typ 1 und einer Luftzufuhr ausgestattet und besitzt keine Zündelektroden. Die Diesel- und Luftzuführungen sind tangential an gegenüberliegenden Seiten angeordnet. Die Luftzufuhr ist in Richtung Schauglas verschoben und damit weiter entfernt vom Katalysator eingeschweißt.

Abbildung 8 zeigt das Foto und eine schematische Darstellung von Brenner Typ 2. Er besitzt zwei Verdampfer vom Typ 2 und keine zusätzliche Gaszuführung, da hier die Primärluft ebenfalls über den Verdampfer zugeführt wird. Zum Zünden besitzt Brenner Typ 2 eine Zündvorrichtung, welche aus zwei Zündelektroden besteht, zwischen denen eine Hochspannung angelegt werden kann, sodass ein Lichtbogen entsteht.

Wird das Schauglas entfernt kann in alle Brennervarianten von hinten über den Flansch ein Abgasteilstrom eingeleitet werden. Bei Brenner Typ 2, der später für die Versuche am Kleindieselaggregat eingesetzt wurde, ist diese Option, wie in Abb. 8

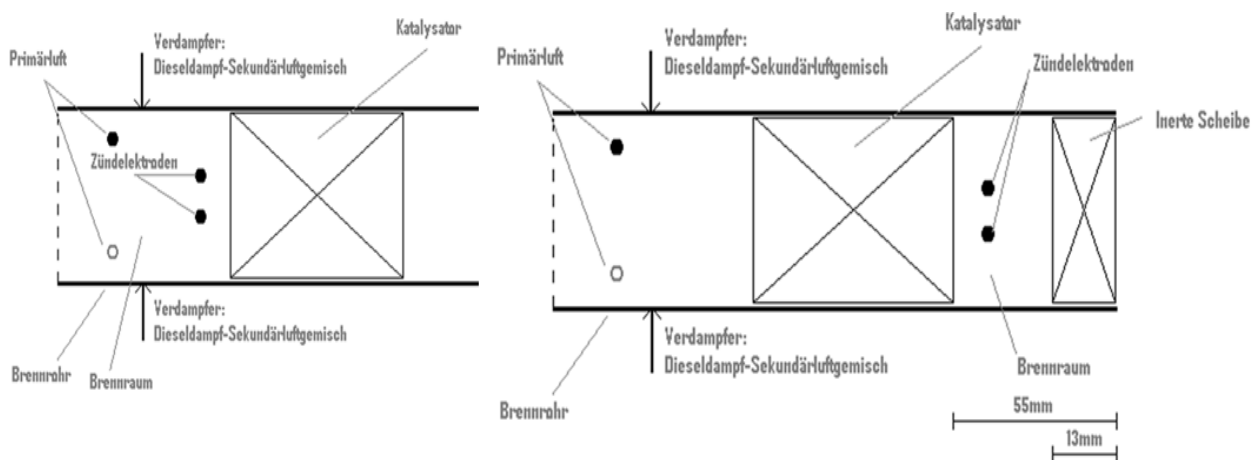
rechts angedeutet realisiert. Im Foto links sind im vorderen Bereich beidseitig die Temperaturmessstellen erkennbar. Der Brennrinnendurchmesser beträgt 39 mm.



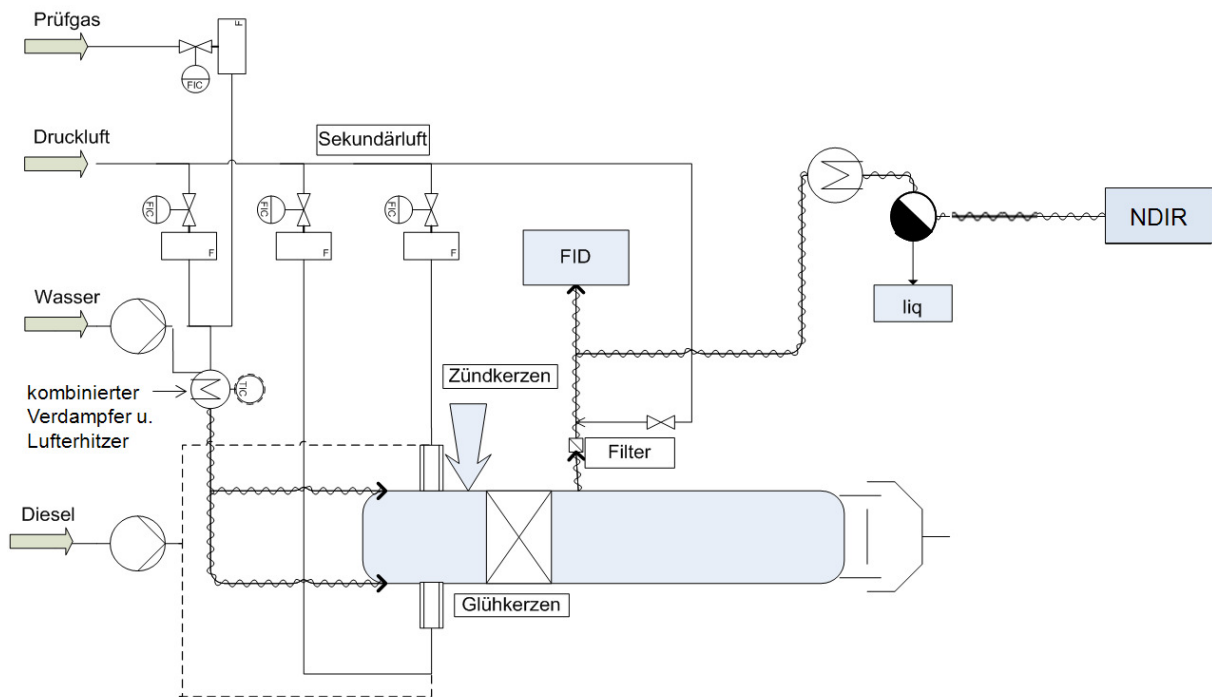
**Abb. 8:** Foto und Prinzipskizze von Brenner Typ 2 mit zwei Verdampfern Typ 2, Zündvorrichtung und Schauglas bzw. Flansch für die Einleitung von Abgas [7, 9]

Die Brennervarianten 3 und 4 unterscheiden sich außer im Brennrinnendurchmesser primär durch die Lage des Brennraumes und der Zünderlektroden. Brenner Typ 3 ist eine Erweiterung von Typ 1. Es wurde ein zweiter Verdampfer Typ 1, eine zweite Luftzufuhr und eine Zündeinrichtung installiert. Der Brennraum verlängert sich aufgrund des Platzbedarfs der Zündeinrichtung um ca. 10 mm. Mit der Modifikation sollte primär der Lastbereich des Brenners Typ 1 erweitert werden, da ein einzelner Verdampfer nur bis zu einer Leistung von ca. 1,5 kW (2 g Diesel/min) einsetzbar ist.

Eine Prinzipskizze des Brenner Typ. 3 ist in Abbildung 9 links dargestellt. Abbildung 9, rechts, zeigt im Vergleich dazu Brenner Nr. 4 mit einem größeren Innendurchmesser von 35 anstatt 26 mm. Der wesentliche Unterschied zwischen Brenner 3 und 4 besteht darin, dass bei Brenner 3 die Zünderlektroden vor dem Katalysator und bei Brenner 4 hinter dem Katalysator angeordnet sind. Dabei dient bei Brenner 4 der Raum vor dem Katalysator als Mischraum für das Diesel-Luftgemisch.



**Abb. 9:** Prinzipskizzen von den Brennertypen 3 (links) und 4 (rechts) [8]



**Abb. 10:** Fließbild der Brenner-Versuchsanlage [8] mit Peripherie für synthetisches Abgas

Das schematische Anlagenfließbild des Brennerprüfstandes ist in Abbildung 10 dargestellt. Die Dosierung von Diesel erfolgt kontinuierlich mittels einer Schlauchpumpe. Zusätzlich werden sämtliche Gasströme über thermische MFCs (mass flow controller) dosiert. Für die Untersuchungen mit dem kommerziellen POX-Katalysator wurde zusätzlich synthetisches Abgas aus Prüfgasen und Wasser zudosiert. Das Wasser wird mit einer HPLC-Pumpe gefördert, in einem Mikroverdampfer [19] verdampft und dem Brenner über beheizte Leitungen zugeführt. Die Gasanalytik umfasst die trockene Messung von CO und CO<sub>2</sub> mittels NDIR (Uras 14) und eine paramagnetische Sauerstoffmessung. Zusätzlich wird der Gesamtkohlenwasserstoffanteil bezogen auf C<sub>3</sub> mittels eines Flammenionisationsdetektors (FID) bestimmt. Details zum Versuchsaufbau, den verwendeten Messgeräten und zur Versuchsdurchführung und Auswertung finden sich in [7] und [8].

Abbildung 11 zeigt ein Foto des Prüfstandes, an welchem die Untersuchungen von Brenner Typ 2 mit realem Abgas in Verbindung mit einer Abgasnachbehandlungseinheit nach Abb. 2 durchgeführt wurden. In der rechten unteren Bildhälfte sind der Prototyp einer Wärmetauscher-Filter-Reaktor-Einheit (WTFR) und daran nach rechts oben angeflanscht der Brenner Typ 2 sowie der Abgas-Bypass zum Betrieb des Brenners mit Abgas erkennbar.

Details zum Aufbau der Versuchsanlage sowie zur Versuchsdurchführung finden sich in [9].

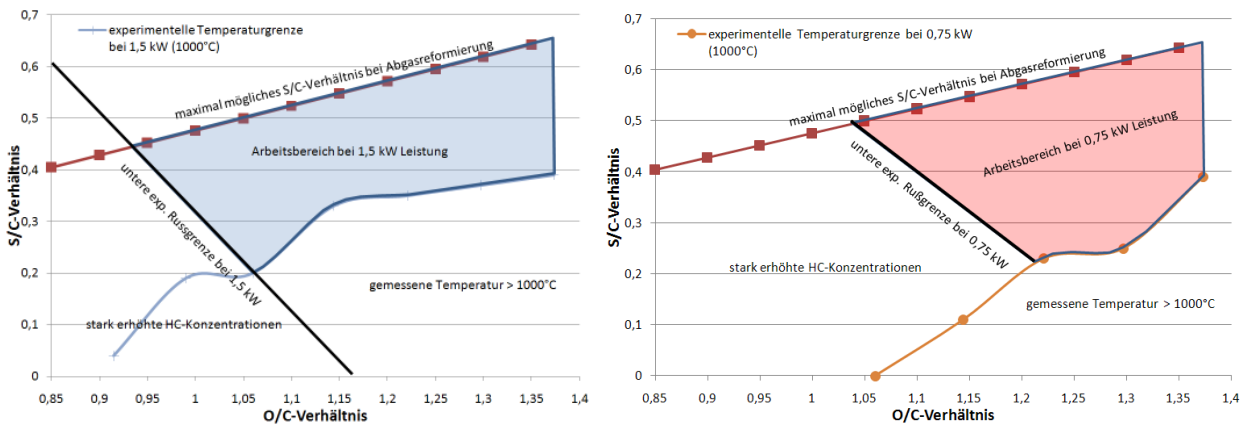


Abb. 11: Foto von Brenner Typ 2 am Prüfstand mit Abgasnachbehandlungseinheit [9]

### **4.3 Thermodynamische Abschätzungen zum Betrieb mit Abgas**

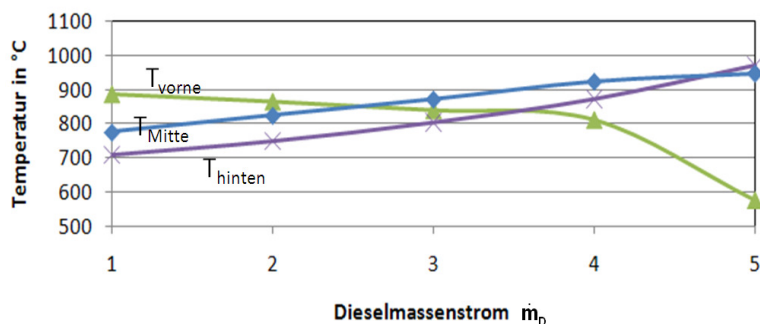
In diesem Abschnitt sind Abschätzungen aufgeführt, mittels derer die Versuchsbedingungen zum Betrieb von Brenner Typ 3 mit synthetischem Abgas und dem kommerziellen POX-Katalysator von Umicore festgelegt wurden. Dazu wurden experimentell die Grenzen ermittelt, ab denen, ausgehend von einem Betrieb mit reinem synthetischem Abgas (8% O<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O, 13% CO<sub>2</sub>), bei Erhöhung des Luftanteils die zulässige Grenztemperatur von 1000 °C überschritten wird. Ein Betrieb mit Abgas bedeutet, dass im Eduktgas neben Sauerstoff und Stickstoff noch CO<sub>2</sub> und Wasser enthalten sind. Somit werden die Betriebspunkte bei diesen Untersuchungen durch das O/C- und das S/C-Verhältnis festgelegt, wobei das maximal mögliche S/C-Verhältnis durch den Betrieb mit reinem Abgas nach oben begrenzt ist.

Zusätzlich wurden mit der kommerziellen Software Multiflash [20] thermodynamische Gleichgewichtsdaten berechnet. Aus diesen lassen sich Bereiche ermitteln, in denen es thermodynamisch zur Rußbildung und zu einem starken Anstieg der HC-Konzentrationen kommen kann. Diese Bereiche sollten bei der Versuchsdurchführung vor allem in der Kaltstartphase des Systems vermieden werden, da diese zusätzlichen Emissionen im kalten DOC der Einheit noch nicht umgesetzt werden können. Details zu den Untersuchungen sind in [7] und [8] beschrieben. Abbildung 12 zeigt für zwei thermische Leistungen des Brenners den zulässigen Betriebsbereich bzgl. S/C und O/C. Vor allem die Grenzkurve für die zulässige Maximaltemperatur verschiebt sich mit der thermischen Leistung deutlich.



**Abb. 12:** Betriebsbereich bei einer thermischen Leistung  $P = 0,75 \text{ kW}$  (rechts) bzw.  $P = 1,5 \text{ kW}$  (links) [8]

Das maximale mögliche S/C-Verhältnis ist durch den Betrieb mit reinem Abgas festgelegt. Da der Kraftstoffstrom konstant gehalten wurde, führt eine Erhöhung des Abgasstroms zum gleichzeitigen Ansteigen des O/C- und des S/C-Verhältnisses. Nach unten wird der Arbeitsbereich durch die jeweils im Katalysator gemessene *Maximaltemperatur* begrenzt. Die unteren experimentellen Rußgrenzen wurden wie folgt mit dem thermodynamischen Gleichgewichtsprogramm Multiflash bestimmt: Für jeden Messpunkt, der durch das O/C- und das S/C-Verhältnis sowie die im Katalysator gemessene *Minimaltemperatur* festgelegt ist, wird berechnet, ob thermodynamisch Ruß als Feststoff ausfallen kann. *Minimal-* und *Maximaltemperatur* im Katalysator hängen dabei stark von der thermischen Leistung ab, Dabei liegt die Maximaltemperatur je nach Dieselmassenstrom entweder vorne, in der Mitte oder hinten im Katalysator (Abb. 13). Da bei einer höheren thermischen Leistung der Wärmeverlust bezogen auf die eingetragene Energie weniger signifikant ist, steigt die mittlere Katalysatortemperatur im Katalysator mit dem Dieselmassenstrom an. Zudem erhöht sich der Gesamtmassenstrom, sodass sich der Ort der Maximaltemperatur von vorne nach hinten verschiebt und bei sehr hohen Volumenströmen die Temperatur am Eintritt deutlich absinkt.



**Abb. 13:** Temperaturen am Eintritt, in der Mitte und am Ende des Katalysators bei konstanter Gaszusammensetzung ( $O/C = 1,14$ ,  $S/C = 0,54$ ) über dem Dieselmassenstrom (thermische Leistung von  $0,75\text{-}3,75 \text{ kW}$ ) bei Brenner Typ 3 [8]

In Abbildung 14 ist exemplarisch die mit Multiflash berechnete Gleichgewichtszusammensetzung bei einer Luftzahl  $\lambda=0,4$  ohne Abgas im Zulauf über der Temperatur dargestellt. Es ist erkennbar, dass ab Temperaturen von ca.  $900\text{-}1000^\circ\text{C}$  im Gleichgewicht hohe  $\text{CO}$ - und  $\text{H}_2$ -Konzentrationen vorliegen, wohingegen die anderen Kom-

ponenten nur zu verschwindenden Anteilen enthalten sind. In der verwendeten Software Multiflash wurde das Vielkomponentengemisch Diesel als Mischung aus N-Dekan und Naphthalen mit demselben C/H-Verhältnis ( $C_{12,31}H_{22,16}$ ) dargestellt, was laut [21] und [22] ein gutes Ersatzsystem für Diesel darstellt. N-Dekan hat ein niedrigeres, Naphthalen ein deutlich höheres C/H-Verhältnis als Diesel.

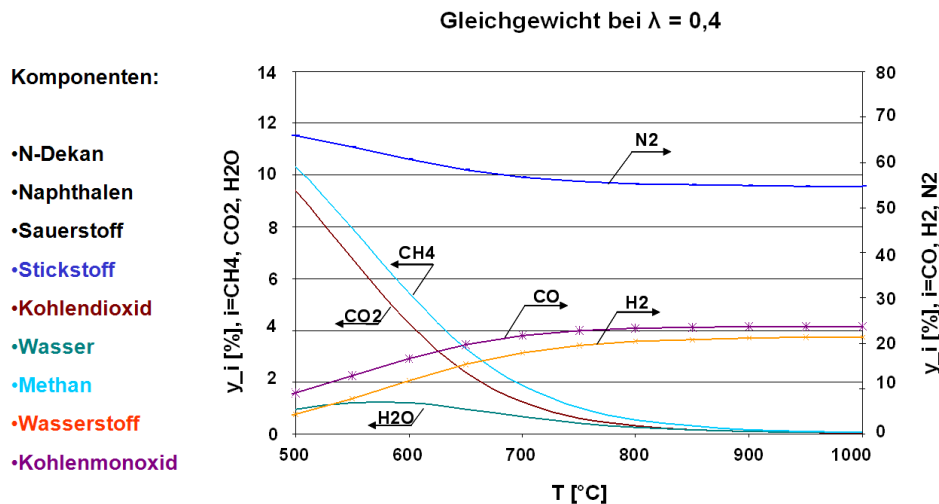


Abb. 14: Gleichgewichtszusammensetzung des Brenngases über der Temperatur bei Betrieb mit  $\lambda=0,4$  ohne Abgas, berechnet mit Multiflash [7]

Die im Experiment gemessenen Zusammensetzungen stimmen zwar nicht genau mit den Gleichgewichtskonzentrationen überein, geben aber die prinzipiellen Tendenzen gut wieder. Die größten Abweichungen ergeben sich für Wasserstoff und die Kohlenwasserstoffe. Allerdings zeigt der Vergleich mit experimentellen Literaturdaten eine sehr gute Übereinstimmung [7, 14], sodass davon ausgegangen werden kann, dass die ablaufenden Reaktionen im Temperaturbereich zwischen 800 und 1000 °C bei hohen Raumgeschwindigkeiten nicht gleichgewichtslimitiert sind.

## 4.4 Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen

### 4.4.1 Stationäres Verhalten der Brennersysteme im POX-Betrieb

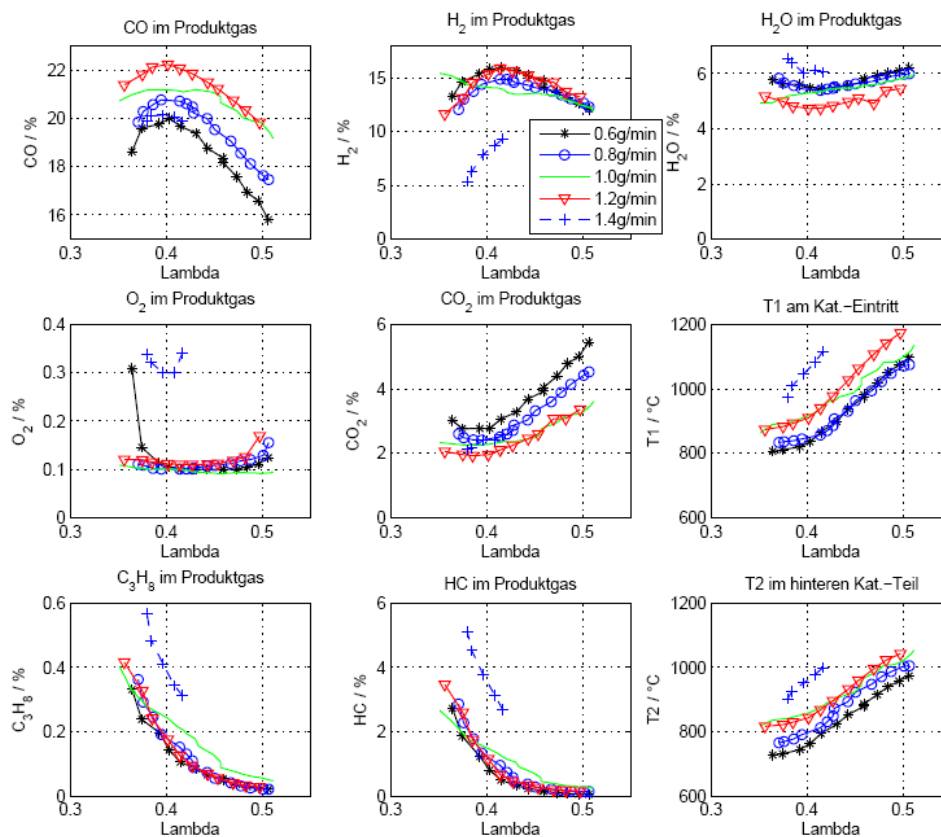
Zunächst wurden die Brennersysteme im Betrieb der POX untersucht. Dabei sollten optimale Betriebsbedingungen gefunden und unterschiedliche Katalysatoren am Brennersystem 1 verglichen werden. Abbildung 15 zeigt die gemessenen Gaskonzentrationen von CO, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Propan, HC und die daraus berechneten Konzentrationen von H<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O, sowie die Temperaturen vorne und hinten im Katalysator über der Luftzahl Lambda. Der Kurvenparameter ist der Dieselmassenstrom, der zwischen 0,6 und 1,4 g/min variiert wurde.

Am Rh-Katalysator mit einer Länge von 15 mm gelten folgende prinzipielle Aussagen: Unterhalb von  $\lambda = 0,45$  werden die als Zwischenprodukt gebildeten Kohlenwasserstoffe (HC) nicht ausreichend umgesetzt. Bei einer Luftzahl von  $\lambda = 0,4$  liegt ein Maximum in den CO- und H<sub>2</sub>-Konzentrationen sowie ein Minimum in den CO<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Konzentrationen vor. Weiterhin sind die sinkenden HC-Konzentrationen sowie die steigenden Temperaturen ( $T_{\max} = 1200\text{ °C}$ ) mit erhöhtem Luftangebot erkennbar.



Bei steigendem Dieselmassenstrom steigt die Raumgeschwindigkeit an und die Wärmeverluste spielen eine geringere Rolle. Darum führt eine Erhöhung der thermischen Leistung zunächst zu einer Erhöhung der CO- und H<sub>2</sub>-Anteile aufgrund der höheren Temperaturen. Bei noch höheren Dieselmassenströmen (1,2 und 1,4 g/min) treten sprunghaft stark erhöhte HC-Konzentrationen sowie ein Einbruch des Sauerstoffumsatzes sowie der H<sub>2</sub>- und der CO-Konzentrationen auf. Dies ist eindeutig auf die Überlastung des Katalysators zurückzuführen, was mit Messungen an einem 30 mm langen Katalysator bestätigt wurde [7], der dieses Verhalten nicht zeigt.

Bei höherer thermischer Leistung (>1,4 g Diesel/min) wurde der Katalysator überhitzt und die Verdampfung war unvollständig, weshalb mit Brenner Typ 1 keine höheren Dieselmassenströme gefahren wurden. Im Vergleich zum Rh-Katalysator ist das Maximum der H<sub>2</sub>- und CO-Konzentrationen beim 3-Wege-Katalysator hin zu höheren  $\lambda$ -Werten ( $\lambda = 0,45$ ) verschoben. Des Weiteren sind die Reformierungsreaktionen (Gln 4.5 und 4.9) kaum ausgeprägt, was zu einer deutlich geringeren H<sub>2</sub>-Konzentration und zu höheren Temperaturen sowie höheren HC- und Wasserkonzentrationen führt [7]. Beide Katalysatortypen zeigen eine leichte Abnahme der Aktivität über der Versuchsdauer ( $T_{\max} = 1200\text{ °C}$ ) [7].



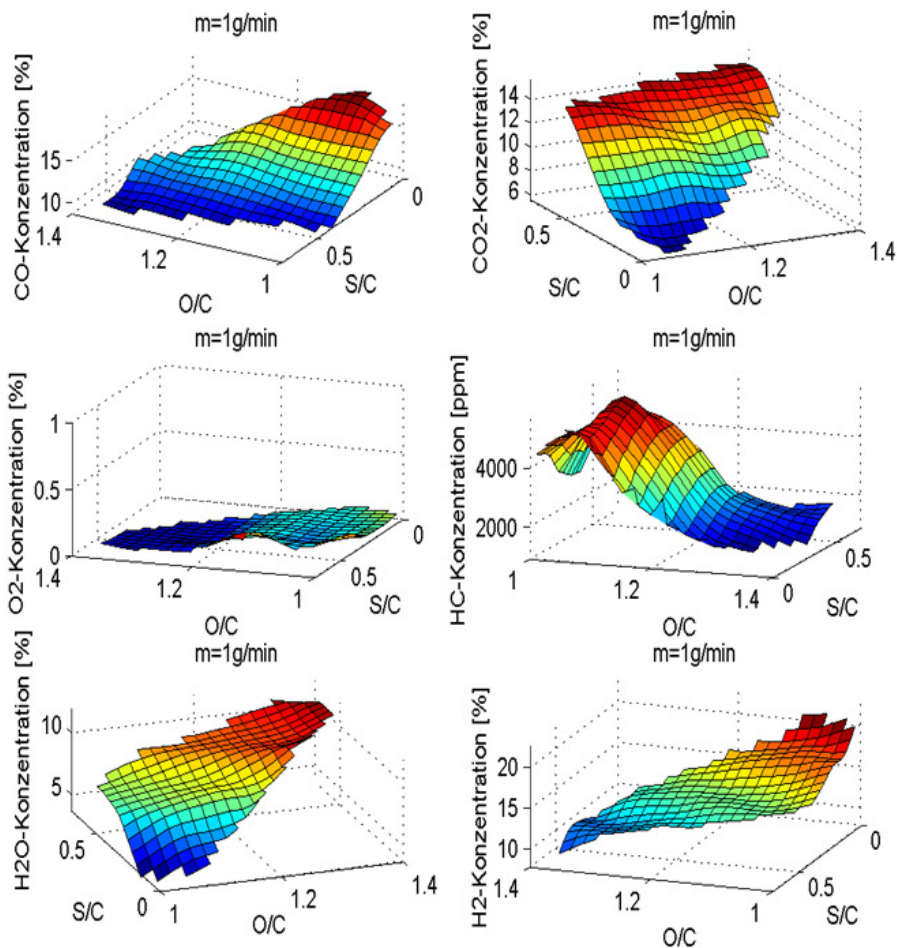
**Abb. 15:** Gaszusammensetzung und Temperaturen bei Brenner Typ 1 mit Rh- Katalysator (Länge 15 mm) ohne Abgaszumischung über der Luftzahl  $\lambda$  [7]

Mit Brenner Typ 2 wurden Betriebspunkte in der POX mit deutlich höheren Dieselmassenströmen zwischen 1,5 und 4 g/min realisiert [7]. Im Vergleich zum Rh-Katalysator von 15 mm Länge wurde die Maximaltemperatur des Rh/Cer-Katalysators auf 1000°C festgelegt. Aufgrund der reduzierten Maximaltemperatur und der geringeren Bedeutung von Wärmeverlusten bei hohen thermischen Leistungen konnte der Brenner nur in einem  $\lambda$ -Bereich von 0,21 bis 0,36 ohne Überhitzung betrieben werden. Bei Dieselmassenströmen oberhalb 3 g/min wurden sehr hohe Konzentrationen an HC von bis zu 6% gemessen. Die Betriebspunkte mit sehr hohen HC-Konzentrationen scheinen wegen der hohen Sekundäremissionen die sich daraus für die Abgasnachbehandlungseinheit ergeben können wenig sinnvoll. Der zulässige  $\lambda$ -Bereich ist aufgrund der mit  $\lambda$  steigenden Temperaturen stark nach oben hin beschränkt. Trotzdem wurde Brenner Typ 2 später für den Betrieb am Motor eingesetzt, da hier die auftretenden Temperaturen durch ein Zumischen von Abgas reduziert werden können [9].

Brenner Typ 3 wurde zunächst ebenfalls mit reiner Luft und dem Rh-Katalysator betrieben [7]. Durch den zweiten Verdampfer vom Typ 1 konnten dabei Dieselmassenströme bis 2,5 g/min realisiert werden. Das Verhalten bei diesen höheren Leistungsstufen ist nicht direkt mit dem von Brenner 1 vergleichbar. Das Maximum in den CO- und H<sub>2</sub>-Konzentrationen ist hin zu  $\lambda = 0,3$  verschoben. Dabei liegen die Temperaturen um 1000°C, wobei erhöhte HC-Konzentrationen zu verzeichnen sind. Die Maximaltemperatur von 1200°C wird bei  $\lambda = 0,42$  erreicht. Bei 2,5 g Diesel/min zeigt sich eine Überlastung des Rh-Katalysators geringer Edelmetallbeladung, was durch die Temperaturen bestätigt wird, die am Austritt höher als am Eintritt sind.

Aus diesem Grund wurde für weitere Experimente der Brenner Typ 3 zusammen mit dem kommerziellen POX-Katalysator eingesetzt. Dabei zeigte sich, dass dieser Katalysator eine deutlich erhöhte Aktivität besitzt, weshalb er mit reiner Luft unter realistischen Bedingungen ( $\lambda \geq 0,3$  bzw. O/C  $\geq 1$ ) nicht ohne thermische Schädigung bei höheren thermischen Leistungen zu betreiben ist. Darum wurde der Brenner mit diesem Katalysator stets unter Zumischung von Abgas in den gemäß Abb. 12 bestimmten zulässigen Betriebsbereichen betrieben [8]. Abbildung 16 zeigt exemplarisch die gemessenen (CO, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, HC) und berechneten (H<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O) Gaskonzentrationen im Katalysatorablauf über dem O/C- und dem S/C-Verhältnis bei einem Dieselmassenstrom von 1 g/min. Es zeigen sich neben der durch das beigemischte Abgas erhöhten CO<sub>2</sub>- und Wasserkonzentrationen ein niedriges Niveau der HC-Konzentration sowie ein vollständiger Sauerstoffumsatz. Die CO- und H<sub>2</sub>-Konzentrationen liegen aufgrund der Verdünnung mit Abgas unter denen der vorangegangenen Ergebnisse. Die CO<sub>2</sub>- und Wasserkonzentrationen steigen mit zunehmendem O/C- und S/C-Verhältnis erwartungsgemäß an. Die CO- und H<sub>2</sub>-Konzentrationen zeigen im Bereich niedriger S/C-Verhältnisse um O/C = 1 ein Maximum.

Mit steigender thermischer Leistung nimmt auch bei Brennersystem 3 die Temperatur und die Raumgeschwindigkeit zu, sodass der Betriebsbereich immer weiter eingeschränkt wird (Abb. 12) bis der Katalysator ab einem Dieselmassenstrom über 4 g/min die anhand vom Abb. 13 diskutierten Überlastungserscheinungen zeigt.



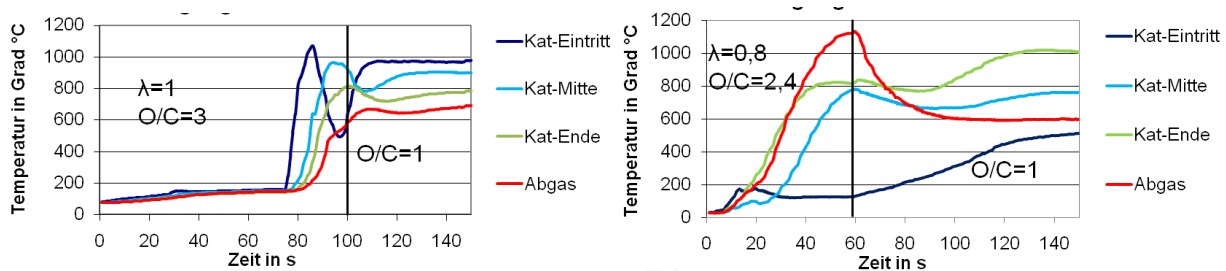
**Abb. 16:** Gemessene und berechnete Konzentrationen (aus Messdaten interpoliert) über O/C und S/C für eine thermische Leistung entsprechend einem Dieselmassenstrom von 1 g/min (Brenner Typ 3, kommerzieller Katalysator) [8]

#### 4.4.2 Kaltstartverhalten

Einen weiteren zentralen Aspekt stellte im Projekt der Kaltstart des Brennersystems dar, da die Abgasnachbehandlungseinheit möglichst schnell auf Betriebstemperatur aufgeheizt werden soll. Dies muss primär über die Bereitstellung eines heißen Gasstromes durch den Brenner im Betrieb der TOX erfolgen. In Abbildung 17 sind die zeitlichen Temperaturverläufe während der Startphase der Brenner vom Typ 3 bzw. 4 dargestellt. Links sieht man den schnellen Start des Brenners im Betrieb der TOX bei  $\lambda = 1$  nach der Zündung bei  $t = 75$  s. Nach kurzer Zeit muss der Brenner in den Betrieb der POX überführt werden, um eine Überhitzung des Katalysators zu vermeiden. Dazu wird zum Zeitpunkt  $t = 85$  s die Dieselfuhr unterbrochen und zum Zeitpunkt  $t = 95$  s mit auf  $O/C = 1$  angepasstem Luftstrom wieder zugeschaltet. Nachteilig ist bei diesem Brennersystem die lange Vorheizdauer von über 1 Minute und die Tatsache, dass die TOX nicht für längere Zeit möglich ist ohne den Katalysator zu überhitzen. Dafür ist nach erfolgter Zündung ein schneller Übergang in den Betrieb der POX möglich. Um den vorderen Bereich des Katalysators nicht zu überhitzen ist der Start nur mit einer geringen Leistung entsprechend 1 g Diesel/min darstellbar,

wodurch die Abgastemperatur der Brenners nach ca. 2 min nur auf einem vergleichsweise niedrigen Niveau von 600-650 °C liegt.

In Abbildung 17 rechts ist der zeitliche Temperaturverlauf von Brenner Typ 4 während der Startphase dargestellt. Hier erfolgt die Zündung sofort (bei doppelter Leistung von 2 g Diesel/min) mit  $\lambda = 0,8$ . Nach ca. 5 s bei  $t = 15$  s erfolgt die Umschaltung auf  $\lambda = 1$ -Betrieb und die Abgastemperatur erreicht nach 35 s die 600 °C-Grenze und nach weniger als 1 Minute 1000 °C. Dabei erwärmt sich der Katalysator ausgehend vom Brennraum hinter dem Katalysator gegen die Strömungsrichtung von hinten nach vorne. Wenn der Luftstrom nach einer Minute um den Faktor 3 reduziert wird ( $O/C = 1$ ), geht der Brenner ohne Weiteres in den Betrieb der POX über. Prinzipiell ist es während der Startphase wünschenswert, den Brenner noch länger im Betrieb der TOX zu betreiben. Dazu muss aus Sicherheitsgründen ein Teilstrom der Luft hinter dem Katalysator zugeführt werden, um bei  $\lambda = 1$  ein Rückzünden in den Katalysator, zu vermeiden, was den Katalysator thermisch schädigen würde. Prinzipiell erweist sich somit die Startstrategie von Brennersystem 4 mit einer Brennkammer hinter dem Katalysator als gut geeignet. Weitere aussichtsreiche Ansätze werden im folgenden Abschnitt 4.5 kurz diskutiert.



**Abb. 17:** Temperaturverläufe während der Startphase von Brenner Typ 3 (links) und 4 (rechts) mit kommerziellem POX-Katalysator [8].

#### 4.4.3 Brenner am Wärmetauscher-Filterreaktor im Motorbetrieb

Für die Erprobung eines WTFR an einem Kleindieselaggregat wurde der Brenner Typ 2 eingesetzt. In Abb. 18 ist der Startvorgang des Brenners und der Abgasbehandlungseinheit anhand der Temperaturen des Brennerausgangs ( $T_{\text{Brenner}}$ ) und des WTFR ( $T_{10}$  (kaltes Ende des Wärmetauschers mit Ein- und Austritt des Motorabgases) bis  $T_{280}$  (heißes Ende mit Brennergaszufuhr)) dargestellt. Nach ca. 120 s erreicht der WTFR an  $T_{280}$  die Katalysator-Zündtemperatur von CO und Propen (ca. 180 °C), nach etwa 3 bis 4 Minuten können die Schadstoffe aufgrund der ausreichen hohen Temperaturen nahezu vollständig umgesetzt werden. Nach ca. 8 Minuten wird die thermische Leistung des Brenners reduziert und das System pendelt sich auf eine Temperatur von rund 350 °C ein.

In Abb. 19 sind die stationären Temperaturprofile über der axialen Koordinate im WTFR für zwei unterschiedliche Betriebsmodi des Brenners dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass im katalytischen Betrieb (mit 3-Wege-Katalysator) trotz halbiertes thermischer Leistung höhere Temperaturen als im rein thermischen Betrieb (ohne

Katalysator) auftreten. Dies liegt an den signifikant höheren Wärmeverlusten im thermischen Betrieb, wo, wie in Abb. 7 links zu erkennen, die Flammen direkt auf die Wand des Brennraums treffen und diese stark aufheizen.

Prinzipiell ist somit die Aufheizung und der Betrieb solcher wärmeintegrierten Abgasnachbehandlungseinheiten mit einem Brenner möglich, der Optimierungsbedarf hinsichtlich der Effizienz sowie der Kaltstartphase wurde jedoch deutlich.

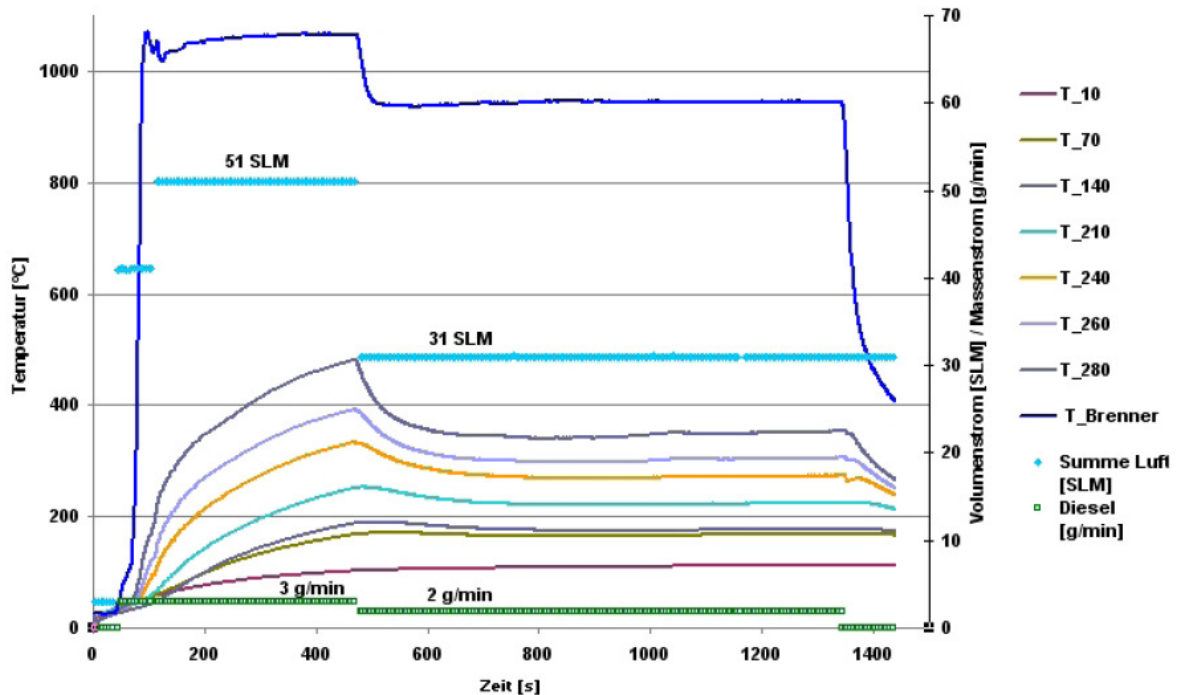


Abb. 18: Startvorgang und Übergang in den stationären Betrieb des WTFR mit thermischem Brenner Typ 2, anhand ausgewählter Temperaturverläufe [9]

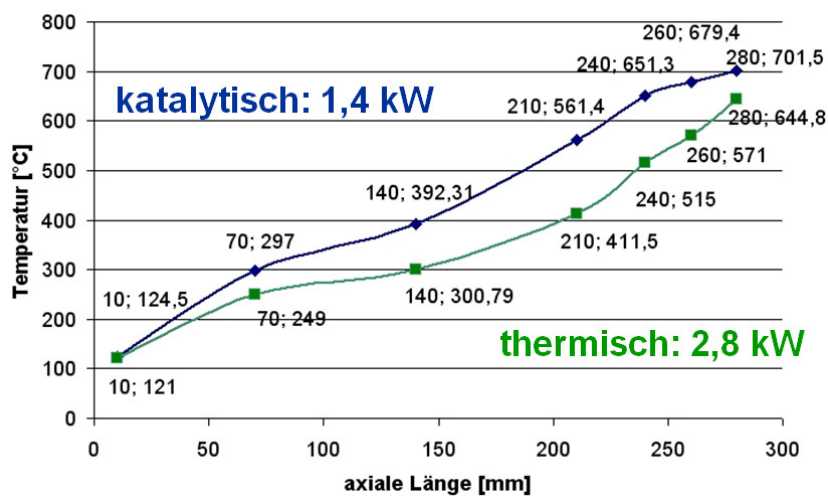


Abb. 19: Stationäre, axiale Temperaturprofile im WTFR bei zwei unterschiedlichen Brennermodi [9]

#### **4.5 Zusammenfassung und Ausblick**

Im Rahmen dieses Projekts wurden verschiedene Kraftstoffbrennerkonzepte entwickelt, aufgebaut und erprobt, sowie thermodynamische Gleichgewichtsbetrachtungen zur Festlegung eines optimalen Betriebsfensters im Betriebsmodus der Abgasreformierung durchgeführt. Die Brenner wurden im Betrieb der partiellen (POX) und der totalen Oxidation (TOX) mit und ohne Beimischung von synthetischem Dieselaabgas an einem Brennerprüfstand und abschließend in Verbindung mit einem Prototyp eines Wärmetauscher-Filter-Reaktor (WTFR) an einem Kleindieselmotor mit realem Motorabgas betrieben. Weiterhin wurde das Kaltstartverhalten der Brennersysteme untersucht und optimiert. Dabei hat es sich gezeigt, dass der Brenner zum Starten zunächst im homogenen Betrieb der TOX betrieben werden sollte, um schnell heißes Abgas zur Aufheizung des WTFR zu erhalten. Allerdings entsprach der mit einem WTFR gekoppelte Brenner Typ 2 in seinem langsamen Startverhalten noch nicht den gestellten Anforderungen. Ein wesentlicher Grund dafür war die Tatsache, dass der Brennraum für die homogene Verbrennung bei diesem Typ noch vor dem Katalysator angeordnet war. Dadurch musste die Leistung der homogenen Verbrennung gedrosselt werden, um den nachfolgenden Katalysator nicht zu überhitzen. Außerdem bewirkte die Aufheizung des Katalysators eine zusätzliche Verzögerung. Zweckmäßigerweise sollte der Brennraum daher wie bei Typ 4 (Abb. 9, rechts) hinter dem Katalysator angeordnet werden. Dabei könnte auch der hinter dem Brennraum angeordnete inerte Monolith entfallen oder lediglich als kurzer Strömungsgleichrichter dienen.

In künftigen Arbeiten soll daher die Brennerversion 4 weiterentwickelt und in Verbindung mit einem neuen WTFR erprobt werden. Dabei sind Strategien wie die getrennte Luftdosierung vor und nach dem Katalysator zu erproben und hinsichtlich eines optimalen Start- und Betriebsverhaltens zu untersuchen. Als Alternativansatz zur elektrischen Vorverdampfung von Kraftstoff sollte die Zerstäubung von Kraftstoff mit einer Düse untersucht werden. Die elektrische Vorverdampfung wurde hauptsächlich im Hinblick auf einen direkt anschließenden Katalysator entwickelt, um bei Kaltstart eine Tropfenabscheidung auf dem Katalysator zu vermeiden. Mit der Anordnung des Brennraums hinter dem Katalysator und dem Kaltstart im TOX-Betrieb sollte diese Notwendigkeit entfallen.

Im Betrieb der POX konnten auch ohne die Beimischung von Abgas bei niedrigen thermischen Leistungen und niedrig edelmetallbeladenen Rh-Katalysatoren geeignete Betriebsbedingungen mit hohen CO- und H<sub>2</sub>-Konzentrationen sowie niedrigen HC-Emissionen gefunden werden. Für einen vergrößerten Lastbereich sind dagegen hoch aktive Katalysatoren mit einer Länge von 30-40 mm notwendig, um hohe HC-Emissionen und Rußbildung zu vermeiden. Dann ist die Beimischung von Abgas essentiell, um den Katalysator vor zerstörerisch hohen Temperaturen zu schützen.

#### Danksagung:

*Unser Dank gilt der Friedrich-und-Elisabeth-Boysen-Stiftung für die Projektfinanzierung, der Beru AG für die Bereitstellung der Flammglühkerzen, der Umicore AG & Co. KG für die Bereitstellung des Katalysators und allen Studenten, die zum Gelingen des Projekts beigetragen haben, für Ihren Einsatz.*

## Literatur:

- [1] C. Brinkmeier, F. Opferkuch, U. Tuttlies, V. Schmeißer, J. Bernnat, G. Eigenberger; Autoabgasreinigung - eine Herausforderung für die Verfahrenstechnik; Chem. Ing. Tech. 77 (2005), 1333-1355.
- [2] F. Opferkuch, G. Eigenberger: Abschlussbericht zum Vorhaben der Boysen-Stiftung "Reinigung partikelhaltiger Motorabgase im Gegenstromreaktor"; Sept. 2002.
- [3] G. Friedrich, G. Kolios, V. Schmeißer, U. Tuttlies, F. Opferkuch, G. Eigenberger; Verfahren und Vorrichtung zur Reinigung von Abgasen; PCT- WO 2004/099577 A1 (Priorität 10.5.2003).
- [4] Friedrich, G., Opferkuch, F., Gaiser, G., Kolios, G., Eigenberger, G.: Kompakter Festbettreaktor für katalytische Reaktionen mit integriertem Wärmetausch; Europapatent EP 0 885 653 (Priorität 8. 6.1998).
- [5] S. Springmann: Kinetische Grundlagen und dynamische Simulation der autothermen Kraftstoffreformierung; Dissertation Universität Stuttgart, Logos Verlag Berlin, 2003.
- [6] F. Maus: CO/H<sub>2</sub>-Synthesegaserzeugung durch Benzinreformierung und Benzin/Reformat-Mischbetrieb von Otto-Motoren; Dissertation Universität Stuttgart, 2008.
- [7] J. Fleck: Untersuchung und Optimierung von Brennersystemen für ein motorunabhängiges Thermomanagement von autonomen Abgasreinigungssystemen; Diplomarbeit Universität Stuttgart, 2008.
- [8] L. Kuttler: Experimentelle Untersuchung von Diesel-Brennersystemen; Bachelorarbeit Universität Stuttgart, 2008.
- [9] M. Beirow: Experimentelle Untersuchung des Aufheiz- und Regenerationsverhaltens einer wärmeintegrierten Filter-Reaktor-Einheit zur Reinigung von Dieselabgasen; Bachelorarbeit Universität Stuttgart, 2008.
- [10] Patent US 4897253. 1987
- [11] S. Ahmed, M. S. Krumpelt: Hydrogen from hydrocarbon fuels or fuel cells; International Journal of Hydrogen Energy 26 (2001), 291-301.
- [12] S. Montel: Brenngaserzeugung aus Dieselkraftstoff für den Einsatz in Brennstoffzellenantrieben; Dissertation Hochschule Aachen, 2002.
- [13] L. Schmidt et al: Syngas in millisecond reactors: higher alkanes and fast lightoff; Chemical Engineering Science 58 (2003).
- [14] T. Aicher: Diesel-Verdampfung: rückstandsfrei, zuverlässig, effizient; Flyer ISE- Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme.
- [15] M. V. Twigg (Hrsg.): Catalyst Handbook; Manson Publishing, 1996.
- [16] C. Severin: Benzinbetriebenes Gaserzeugungssystem für die PKW-Bordstromversorgung auf PEM-Brennstoffzellenbasis; Dissertation TH Aachen, 2006.
- [17] G. J. Panuccio, B. J. Dreyer, L. D. Schmidt: A Comparison of the Catalytic Partial Oxidation of C<sub>1</sub> to C<sub>16</sub> Normal Paraffins; American Institute of Chemical Engineers 53 (2007), 187-195.
- [18] High-Tech-Glühkerzen (Typ GE, Typ GN). Perfektion eingebaut [Online] BERU AG; <http://www.beru.com/deutsch/produkte/gluehkerzen/dreiphasen.php> (2008).
- [19] Verdampfertechnologie [Online] Univ. Stuttgart: Inst. für Chem. Verfahrenstech.; <http://www.icvt.uni-stuttgart.de/de/institut/verdampfer/verdampfer.html> (2008).
- [20] Multiflash [Online] Infochem; <http://www.infochemuk.com/product/products.htm> (2008)
- [21] R. Subramanian et al: Catalytic partial oxidation of higher hydrocarbons: reactivities and selectivities of mixtures; Chemical Engineering Science 59 (2004), 5501-5507.
- [22] H. Curran et al: The Ideal Gas Thermodynamics of Diesel Fuel Ingredients: I. Naphthalene Derivates and Their Radicals; Journal of Physical and Chemical Reference Data 29 (2000), 463-517.