
Simulation katalytisch aktiver Partikelfilter für die Abgasnachbehandlung von Kraftfahrzeugen: Reaktionstechnische Untersuchungen von Stoff- und Wärmetransporteffekten im Filter-Reaktor



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Vom Fachbereich Chemie

der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)

genehmigte

Dissertation

vorgelegt von

Bastian Opitz, M. Sc.

aus Aachen.

Referent: Prof. Dr.-Ing. H. Vogel

1. Korreferent: Prof. Dr. C. Hess

2. Korreferent: Prof. Dr. O. Deutschmann

Tag der Einreichung: 09. September 2015

Tag der mündlichen Prüfung: 02. November 2015

Darmstadt 2016

D17

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	v
1 Einleitung	1
1.1 Motivation	1
1.2 Aufgabenstellung	5
2 Stand der Wissenschaft und Technik	7
2.1 Partikelfilter	7
2.2 Simulation von Partikelfiltern	8
2.3 Partikelfilter für Benzinfahrzeuge (Gasoline Particulate Filter)	12
2.3.1 Motivation	12
2.3.2 Konzept, Machbarkeit und Auslegungskriterien	13
2.3.3 Kaltstartverhalten	16
2.3.4 Vergleich Durchflussmonolith und Partikelfilter	17
2.4 Selektive Katalytische Reduktion	19
2.4.1 Motivation und Konzept des SDPF	19
2.4.2 Simulationsstudien SDPF	21
2.4.3 NH ₃ Dosierstrategie	22
2.5 Verhalten von Ruß	24
2.5.1 Partikelemissionen und Ruß	24
2.5.2 Regeneration von Ruß	26
2.5.3 Mechanismen der Rußoxidation	27
2.5.3.1 O ₂ als Oxidationsmittel	27
2.5.3.2 NO ₂ als Oxidationsmittel	29
2.5.4 Kinetische Modellierung der Rußregeneration	31
2.5.4.1 Oxidation mit O ₂	32
2.5.4.2 Oxidation mit NO ₂	33
3 Methoden	35
3.1 Experiment	35
3.1.1 Katalysator-Proben	35
3.1.1.1 Drei-Wege-Katalysatoren	35
3.1.1.2 Filtersubstrate für die Rußbeladung	36
3.1.2 Modellgasanlage	36
3.1.3 Laborreaktoren und Versuchsdurchführung	37
3.1.3.1 Fast-Light-Off Reaktor	37
3.1.3.2 Druckverlust-Reaktor	38
3.1.3.3 Berußung am Motorprüfstand	39
3.1.3.4 Validierung des Druckverlust-Reaktors	40

3.2	Modellierung	41
3.2.1	Physikalisches Modell für den Partikelfilter	41
3.2.2	Physikalisches Modell für den Durchfluss-Monolithen	49
3.2.3	Kinetische Modelle	51
3.2.3.1	CO-Oxidation	52
3.2.3.2	SCR-Washcoat	52
3.2.3.3	Ruß Oxidation	53
3.2.4	Ammoniak Dosierstrategie	53
3.2.4.1	Konzept der Dosierstrategie	54
3.2.4.2	Optimierungsproblem	55
4	Ergebnisse und Diskussion*	57
4.1	Reaktionstechnische Untersuchung des Umsatzverhaltens von Monolith und Filter	57
4.1.1	Vergleich Monolith und Filter	58
4.1.1.1	Konzept der reaktionstechnischen Untersuchungen	58
4.1.1.2	Vergleich des Katalysatorwirkungsgrades	59
4.1.1.3	Wirkungsgrad-Minimum beim Filter-Reaktor	61
4.1.2	Sensitivitätsanalyse der Einflussfaktoren	63
4.1.2.1	Dimensionslose Kennzahlen	63
4.1.2.2	Damköhler-Zahl I - DaI	66
4.1.2.3	Äußerer Stofftransport - Bo/Pe _{wall}	69
4.1.2.4	Variation der Freiheitsgrade	70
4.1.2.5	Axiale Ungleichverteilung der Strömungsgeschwindigkeit	71
4.1.3	Zusammenfassung	73
4.2	Kaltstart-Verhalten am Beispiel des GPF	75
4.2.1	Experimenteller Vergleich des Kaltstart-Verhaltens für Filter und Monolith	75
4.2.2	Vergleich Experiment und Simulation	77
4.2.2.1	Parametrierung des kinetischen Modells für die CO-Oxidation	77
4.2.2.2	Modellvorhersage für den Kaltstart des Filters	77
4.2.3	Sensitivitätsanalyse	79
4.2.3.1	Einfluss der thermischen Masse des Katalysators	79
4.2.3.2	Einfluss der Zelldichte	81
4.2.3.3	Einfluss der Wärmekapazität der Stopfen	82
4.2.3.4	Intrinsische Unterschiede zwischen Filter und Monolith	83
4.3	Selektive katalytische Reduktion am SDPF	91
4.3.1	Ammoniak-Dosierstrategie für SCR-Katalysatoren	91
4.3.1.1	Optimierung der NH ₃ -Dosierstrategie	91
4.3.1.2	Robustheit der Dosierstrategie	94
4.3.1.3	Vergleich unterschiedlicher Katalysatorstechnologien	96
4.3.2	Stationärer Umsatz des SDPF	97
4.3.3	Transientes Verhalten des SDPF	98
4.3.3.1	Dynamisches NH ₃ -Speicherverhalten	98
4.3.3.2	Systemantwort auf einen Temperatursprung	100
4.3.4	Realitätsnaher Vergleich am Fahrzyklus	102
4.3.4.1	Optimierung der Ammoniak-Dosierstrategie	102

4.3.4.2	Vergleich von Filter und Monolith	103
4.4	Verhalten von Ruß	105
4.4.1	Parametrierung des Simulationsmodells	105
4.4.1.1	Druckverlust	105
4.4.1.2	Regeneration mit O ₂	112
4.4.1.3	Regeneration mit NO ₂	115
4.4.1.4	Validierung	118
4.4.2	Anwendungsbeispiel - SDPF	120
4.4.2.1	Vergleich der Rußregeneration	120
4.4.2.2	Ursache für den beobachteten Unterschied	122
4.4.2.3	Einfluss des NO ₂ zu NO _x Verhältnisses	123
*4.4.2.4	Modellstudie: Radiale Zonierung	125
5	Zusammenfassung	129
6	Ausblick	135
	Literaturverzeichnis	137