

FUELS JOINT
RESEARCH GROUP



Band 23

3. Tagung der Fuels Joint Research Group
am 20. und 21. September 2018 in Braunschweig

KRAFTSTOFFE FÜR DIE MOBILITÄT VON MORGEN

Herausgeber: Jürgen Krahl, Axel Munack, Peter Eilts, Jürgen Büniger



Cuvillier Verlag Göttingen



Kraftstoffe für die Mobilität von morgen





3. Tagung der Fuels Joint Research Group
am 20. und 21. September 2018 in Braunschweig

KRAFTSTOFFE FÜR DIE MOBILITÄT VON MORGEN

Herausgeber: Jürgen Krahl, Axel Munack, Peter Eilts, Jürgen Bünger



Cuvillier Verlag Göttingen



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliographische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2018

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2018

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2018

Gedruckt auf umweltfreundlichem, säurefreiem Papier aus nachhaltiger Forstwirtschaft.

ISBN 978-3-7369-9845-2

eISBN 978-3-7369-8845-3



Inhaltsverzeichnis

Die Neufassung der Erneuerbare Energien-Richtlinie (RED II) im Kontext der globalen Marktversorgung bei Agrarrohstoffen und des Zieles einer Dekarbonisierung des Verkehrsbereichs Stephan Arens	7
Der Dieselmotor – Zukunft oder Ende? Reinhard Kolke, A. Gärtner	12
Biogenic and Synthetic Fuels – Chances and Risks from ReFuels Thomas Koch, U. Wagner, J. Sauer, O. Toedter	22
Stickoxidgrenzwert: Wurde er richtig abgeleitet? Jürgen Büniger, J. Krahl	24
NO_x vs. CO₂ - Is the comparison between local pollutant and global greenhouse gas emissions possible? Friedrich Dinkelacker, F. Galli	32
Perspektiven für flüssige Energieträger und Rohstoffe aus Sicht der Mineralölindustrie Christian Küchen	42
Herausforderung und Ansätze zur Bestimmung von Stabilitätskennwerten alternativer Kraftstoffe Simon J. Eiden, A. Singer, S. Feldhoff	53
Erneuerbare Kraftstoffe und Chemikalien aus Strom, CO₂ und Dampf Karl Hauptmeier	65
Beyond Batteries – Electrochemical Strategies for Fuel Synthesis Uwe Schröder, W. Sauter, M. Guschakowski, O.O. James	73
Alternative Kraftstoffe aus Fischer-Tropsch-Synthese in Kombination mit Hydroformylierung für verbrauchs- und emissionsarme Verbrennungsmotoren von heute und morgen Bastian Lehrheuer, M. Zubel, D. Neumann, B. Heuser, K. Thenert, W. Leitner, S. Pischinger	76
OME – ein Kraftstoff für den Dieselmotor der Zukunft? Christian Beidl, M. Münz, A. Mokros	89
Ausblick auf zukünftige PtX-Kraftstoffe für die ländliche Mobilität Joachim Dohmann	99
On-board Sensorik zur Kraftstofferkennung Martin Unglert, J. Krahl	110



Untersuchungen zum Klopfverhalten von LNG Peter Eilts, S. Vallabhuni, L. Klare, K. Moshhammer	119
GKI-Verfahren zur Bestimmung der Klopfbarkeit mit wesentlichen Funktionserweiterungen Johann Hauber, K. Huber, R. Nell	130
Phänomenologische Untersuchung des Einspritzverhaltens von Pflanzenölkraftstoff Robert Altmann, H.-P. Rabl, M. Gaderer	144
Entwicklung eines Multisensors für hydraulische Prozessanlagen Sascha Braun, J. Krahl	145
Optimization of new fuel characterization in a jet stirred reactor Ghazaleh Esmaeelzade, K. Moshhammer, R. Fernandes, D. Markus, U. Maas, H. Großhans	146
ElectroFuels – Möglichkeiten von CO₂-neutralen Antrieben Andreas Goldmann, H. Hansen, F. Dinkelacker	147
Aspekte und Beurteilung der sicheren verbrennungsmotorischen Anwendung von Oxymethylenethern (OME) Philipp Haltenort, K. Hackbarth, U. Arnold, J. Sauer	149
Characteristics in the ignition of fuel/air compositions Johann-Robert Kummer, S. Essmann, H. Großhans, D. Markus, U. Maas	151
Entwicklung eines Klima- und Höhensimulationsprüfstands zur Untersuchung und Bewertung von neuartigen Biokraftstoffen für den Einsatz in luftgekühlten Kleinmotoren Artur Martel	152
Grundölalterung unter Einfluss verschiedener Biokraftstoffe Anja Singer, J. Krahl	154
Multisensor zur zerstörungsfreien Analyse von Kraftstoffparametern Jens Staufenberg, O. Schröder, J. Krahl	155
Autorenverzeichnis	156
Mitglieder der Fuels Joint Research Group	160



Die Neufassung der Erneuerbare Energien-Richtlinie (RED II) im Kontext der globalen Marktversorgung bei Agrarrohstoffen und des Zieles einer Dekarbonisierung des Verkehrsbereichs

Stephan Arens

Abstract

In November 2016, the European Commission presented a package of eight guidances and regulations to support the delivering of “clean energy for European citizens”. One part was a proposal for a reform of the Renewable Energy Directive (RED II), setting the rules of the European biofuel policy after 2020 up to the year 2030. As one of the most important details of the RED II-proposal, a phasing-down for crop-based biofuels was planned until 2030. They should be replaced by advanced biofuels e.g. from waste and residues. European Parliament, EU-member states and European commission discussed the proposal intensively during the last months. The trilogue found a compromise at June 14th, 2018. For UFOP’s view, it is essential to maintain an important role of crop-based biofuels in a future fuel market, because farmers need this market to stabilize prices and income. Additional to that, “first generation” biofuels are strongly needed in transport sector to reduce greenhouse gas emissions!

1 Die Neufassung der Erneuerbare Energien Richtlinie (RED II)

1.1 Das Winterpaket der Europäischen Kommission

Keine zwei Jahre nach dem Kompromiss der sogenannten „iLUC-Richtlinie“¹, mit der eine Kappungsgrenze von 7 % für Biokraftstoffe aus Anbaubiomasse eingeführt worden war, hat die EU-Kommission im November 2016 ein umfangreiches Regelungs-paket vorgelegt, das erhebliche Auswirkungen auf die Entwicklung des Biokraftstoffsektors in den nächsten Jahren haben wird. Das Winterpaket der Europäischen Kommission² umfasst über 1.000 Seiten und besteht aus insgesamt acht Richtlinien- und Verordnungsvorschlägen, darunter ein Vorschlag zur Reform der in der Erneuerbare Energien-Richtlinie festlegten EU-Biokraftstoffpolitik (RED II). Ein wesentlicher Teil des Regelungsvorschlags für den Zeitraum bis 2030 war und ist die Forderung nach einem massiven Abschmelzen der Biokraftstoffe aus Anbaubiomasse bis zum

¹ iLUC = indirect land use change – Indirekte Landnutzungsänderungen; iLUC-Richtlinie: RL (EU) 2015/1513 des Europäischen Parlamentes und des Rates vom 09.09.2015 zur Änderung der Richtlinie 98/70/EG über die Qualität von Otto- und Dieselmotorkraftstoffen und zur Änderung der Richtlinie 2009/28/EG zur Förderung der Nutzung von Energie aus erneuerbaren Quellen

² COM(2016) 860 „Saubere Energie für alle Europäer“ vom 30.11.2016

Jahr 2030. Gleichzeitig soll die Entwicklung und Produktion neuartiger Biokraftstoffe, etwa aus Abfall- und Reststoffen mit Mindestanteilen angereizt werden (siehe Bild 1).

Über den Vorschlag der EU-Kommission wurde seitdem in verschiedenen Ausschüssen des Europäischen Parlamentes intensiv diskutiert. Nachdem sich das Plenum des EU-Parlamentes und die Vertreter der Mitgliedstaaten auf die jeweilige Position verständigt hatten, konnten die Trilog-Verhandlungen zwischen EU-Parlament, dem Europäischen Rat und der EU-Kommission beginnen.

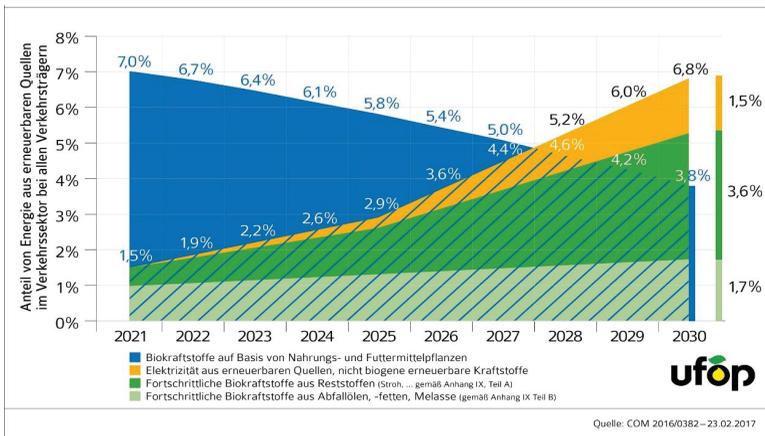


Bild 1: Vorschlag der EU-Kommission zur RED II: Anteile der verschiedenen Erneuerbare Energie-Quellen im Verkehrssektor im Zeitraum 2021 bis 2030

1.2 Ergebnis der Trilog-Verhandlungen zur RED II

Am 27.06.2018 hat der Ausschuss der ständigen Vertreter der Mitgliedstaaten bei der EU-Kommission (AStV) dem Ergebnis des Trilog-Beschlusses vom 14.06.2018 zugestimmt. Die Regierungen der Mitgliedstaaten machen damit den Weg frei für die formelle Übermittlung des Trilog-Beschlusses an das Europäische Parlament. Das Parlament könnte dem Verhandlungsergebnis noch im Oktober 2018 formell zustimmen. Die Verhandlungen stehen unter einem enormen Zeitdruck, denn nach der Einigung in allen Punkten des Winterpaketes der EU-Kommission müssen die entsprechenden Regelungen noch in den EU-Mitgliedstaaten national umgesetzt werden. Dies wird voraussichtlich im Laufe des Jahres 2019 erfolgen.

Die wesentlichen Punkte des Kompromisses vom 14.06.2018 sind:

- Der Zielwert für den Anteil erneuerbarer Energien (EE) am Gesamtenergieverbrauch soll von 27% im Jahr 2020 auf 32% im Jahr 2030 steigen. Diese Zielvorgabe wird in 2023 evaluiert.
- Beibehaltung eines separaten Zielwertes für den Anteil EE im Transportsektor.
- Anhebung des Anteils EE im Transportsektor von 10% (2020) auf 14%. Auch hier Evaluierung in 2023.

- Beibehaltung der Kappungsgrenze 7% (energetisch) für *Biokraftstoffe aus Anbaubiomasse (1G)* gemessen am Energieverbrauch im Straßen- und Schienenverkehr.
- Unterhalb der Kappungsgrenze von 7% Beschränkung der 1G auf Anteil am Verbrauch in 2020 plus 1%-Punkt.
- Der vom EU-Parlament geforderte *Ausschluss der Anrechnung von Palmöl* in Biokraftstoffen ab 2021 wurde von der EU-Kommission mit Blick auf das internationale Handelsrecht (WTO) abgelehnt. Stattdessen wird der Mengenanteil ab 2021 auf die Verbrauchsmenge in 2019 gedeckelt. Ziel ist eine schrittweise Verringerung des Palmölanteils ab 2023 auf 0% bis spätestens 31.12.2030.
- Die EU-Kommission muss bis zum 01.02.2019 auf der Basis eines Berichts über die Entwicklung der weltweiten Anbaufläche einen delegierten Rechtsakt vorlegen, der Kriterien für die Zertifizierung von Biokraftstoffen, Biobrennstoffen und fester Biomasse in Bezug auf das Risiko von iLUC umfasst.
- Festlegung von steigenden Unterzielen für fortschrittliche Biokraftstoffe (2G), zum Beispiel aus Reststoffen wie Stroh, Gülle oder Bagasse (Zuckerrohr), beginnend mit 0,2% in 2022, 1,0% in 2025 und 3,5 % in 2030.
- Begrenzung für 2G-Biokraftstoffe aus Abfallstoffen wie gebrauchten Pflanzenölen oder -fetten, tierischen Fetten etc. auf 1,7 %.

Kritisch zu bewerten ist aus Sicht der UFOP, dass bisher keine klare Entscheidung zur Regelung der Palmöl-Verwendung getroffen wurde. Denn im Fokus der kritischen Auseinandersetzung zur Rohstoff-Frage im Biokraftstoffbereich ist und bleibt das Palmöl. Problematisch ist ebenfalls die Einführung von Multiplikatoren zur Mehrfachanrechnung von Biokraftstoffen aus Rest- und Abfallstoffen sowie für die E-Mobilität. Die UFOP hatte sich mit Nachdruck gegen die Einführung von Multiplikatoren ausgesprochen. Denn hierbei wird nur ein „virtueller“ Anteil Erneuerbarer Energie erreicht, aber kein Beitrag zum Klimaschutz im Verkehrssektor geleistet. Nachhaltig zertifizierte und treibhausgasoptimierte Biokraftstoffe werden dagegen aus dem Markt gedrängt.

2 Die globale Marktversorgung bei Agrarrohstoffen

Bei der Debatte der vergangenen Jahre um die Ausgestaltung der EU-Biokraftstoffpolitik wurde von vielen Nicht-Regierungsorganisationen immer wieder ein Argument angeführt, warum die Nutzung von Agrarrohstoffen für die Produktion von Biokraftstoffen eingeschränkt werden sollte: nach Meinung dieser Organisationen steht die Verwendung zum Beispiel von Raps, Getreide oder Zuckerrüben für diesen Einsatzzweck in direkter Konkurrenz zur Verwendung als Lebensmittel. Demzufolge würde die Versorgung für die Bevölkerung eingeschränkt und es sei ein Anstieg der Rohstoff- und damit der Verbraucherpreise zu befürchten. Der Blick auf die Versorgungssituation der weltweiten Agrarmärkte zeigt eine gegenteilige Entwicklung (Bild 2-4): Die weltweite Erzeugung zum Beispiel von Getreide, Ölsaaten und Pflanzenölen wurden in den vergangenen Jahrzehnten zum Teil deutlich ausgeweitet. Dies hat in vielen Regionen der Welt einen massiven Druck auf die Erzeugerpreise ausgelöst, mit der Konsequenz, dass in vielen Ackerbaubetrieben Europas derzeit eine nachhaltige Betriebsentwicklung nicht mehr möglich ist. Wichtige Investitionen in Innovationen zum Beispiel in der Landtechnik können nicht vorgenommen werden.

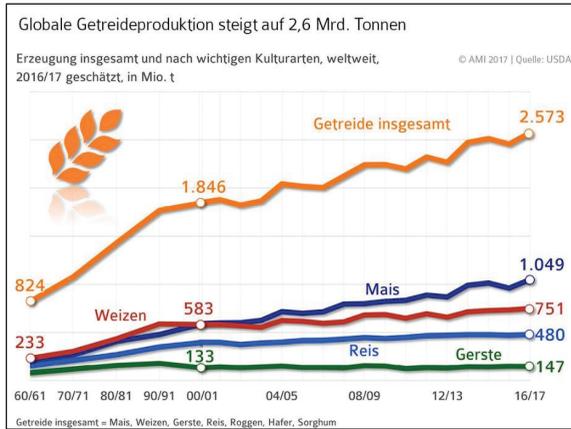


Bild 2: Entwicklung der globalen Getreideproduktion von 1960 bis heute

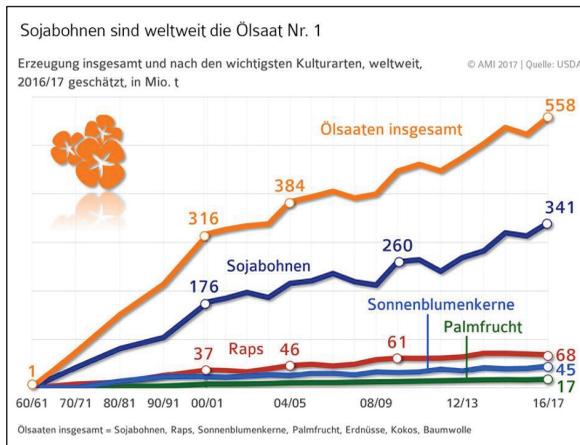


Bild 3: Entwicklung der globalen Ölsaatenproduktion von 1960 bis heute

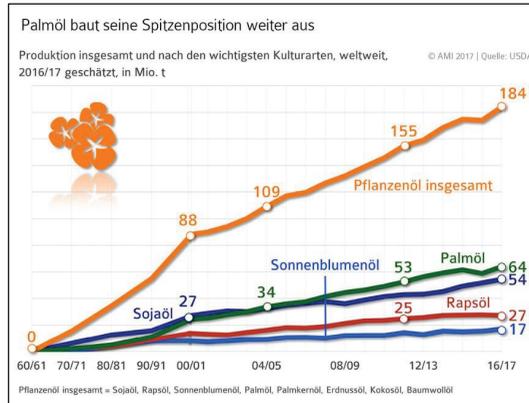


Bild 4: Entwicklung der globalen Pflanzenölproduktion von 1960 bis heute

In der Konsequenz zeigt der Blick auf die weltweite Versorgungssituation und die Entwicklung der Agrarrohstoffpreise, wie wichtig der Biokraftstoffsektor als Absatzmarkt für Agrarrohstoffe ist. Ohne diesen wichtigen Absatzkanal (ca. 2/3 des in deutschen Ölmühlen hergestellten Rapsöls werden zu Biokraftstoffen verarbeitet) würde der Mengen- und damit der Preisdruck weiter massiv zunehmen. Nur mit einer ambitionierteren Biokraftstoffpolitik können die Märkte preiswirksam stabilisiert und ein messbarer Beitrag zur Dekarbonisierung der Kraftstoffe und damit des Verkehrssektors geleistet werden.

3 Die notwendige Dekarbonisierung des Verkehrsbereichs

Ein Grund für die zuletzt schnelle Verständigung im Trilog-Verfahren zur RED II und zu den Regelungsvorschlägen der Energieeffizienz-Richtlinie und zur Governance-Verordnung ist der Termindruck für die Vorlage der nationalen Klima- und Energiepläne für die Mitgliedstaaten der EU. Im Kern geht es dabei um die Umsetzung des Pariser Klimaschutzabkommens von 2015, das von 196 Regierungsvertretern unterzeichnet worden war.

Die UFOP hat anlässlich der Ratifizierung des Abkommens unterstrichen, dass Deutschland und alle anderen Industriestaaten ihre Verantwortung für die Entwicklung der globalen Treibhausgas-(THG-)Emissionen anerkennen und einen umso größeren Beitrag zum Klimaschutz leisten müssen. Nur so ist das sogenannte 2-Grad- oder besser 1,5-Grad-Ziel bis 2050 zu erreichen. Insbesondere der Verkehr steht hier im Fokus, denn dieser Sektor weist seit 1990 stetig steigende THG-Emissionen auf, vor allem durch den Anstieg des Schwerlastverkehrs infolge der guten konjunkturellen Entwicklung. Eine Minderungsoption steht bereits heute bereit und kann im bestehenden Fahrzeugpark und ohne den Aufbau einer zusätzlichen Infrastruktur eingesetzt werden: Biokraftstoffe aus nachhaltig erzeugten, zertifizierten Biomasse-Rohstoffen. Die Verfügbarkeit dieser Rohstoffe ist erwiesen.

Der Dieselmotor – Zukunft oder Ende?

Reinhard Kolke, A. Gärtner

Abstract

Stricter emission and immission regulations have resulted in increasingly high requirements for passenger cars. Diesel cars, in particular, have been at the centre of the public environmental debate. Whereas several years ago the focus was chiefly on particulate matter (PM₁₀) and soot particles, diesel vehicles have meanwhile been identified as the main sources of nitrogen oxide emissions (NO_x/NO₂). Therefore, with more emphasis on traffic restrictions, car drivers' uncertainty is increasing. ADAC studies will show whether diesel may still play a role in the future.

1 Aktuelle Situation

Das Bundesverwaltungsgericht hat mit seinem Urteil vom 27. Februar 2018 den Weg für mögliche Fahrverbote in Städten geebnet.

Die konkrete Ausgestaltung von Fahrverboten und die Kriterien für betroffene Fahrzeuge sind allerdings noch offen. Das Urteil des Bundesverwaltungsgerichts legt nahe, dass Fahrverbote für Euro 6-Diesel in den nächsten Jahren unverhältnismäßig wären. Im Fokus der Diskussion stehen deshalb vor allem Dieselaautos, die nicht die Euro 6-Norm erfüllen. Aus Gründen der Verhältnismäßigkeit, so das Bundesverwaltungsgericht, kommen zonale Fahrverbote für Euro 5-Diesel erst nach September 2019 in Betracht. In Fahrverbote für Einzelstrecken können sie jedoch schon jetzt einbezogen werden (vgl. Hamburg).

Viele Fragen bleiben somit offen. Diesel-Besitzer befürchten hohe Wertverluste ihrer Fahrzeuge. Pendler sind unsicher, welches Verkehrsmittel sie zukünftig zur Arbeit bringen soll.

1.1 Entwicklung der Emissionen und Immissionen

Die tatsächlichen Emissionen der Fahrzeuge, insbesondere mit Dieselmotor, gehen bei weitem nicht so stark zurück, wie es die Verschärfung der Grenzwerte vermuten lässt. Grund hierfür ist vor allem, dass Fahrzeuge vielfach von den Herstellern auf die Erfüllung der Typgenehmigung optimiert werden und im realen Verkehr meist deutlich höhere Emissionen produzieren, wie auch die Messungen im Rahmen des ADAC Eco-test zeigen (vgl. Punkt 3).

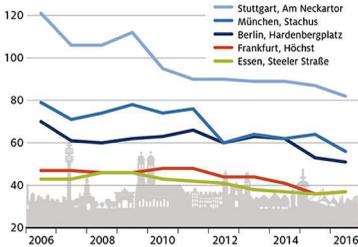
Dies spiegelt sich auch bei der Entwicklung der Immissionen wieder. Während die Stickoxid-Konzentrationen (NO_x) an stark belasteten Verkehrsmessstellen, zum Teil auch im Ballungsraum-Hintergrund, in den vergangenen Jahren bereits deutlich ab-

nahmen, blieb die NO₂-Konzentration an stark befahrenen Hauptverkehrsstraßen weiterhin zu hoch, siehe Bild 1. Dabei wird die NO₂-Immission an den kritischen Messstellen wesentlich vom Anteil des NO₂ in den NO_x-Emissionen bestimmt. Als Hauptverursacher gelten Fahrzeuge mit Dieselmotor.

Weniger schädliches Stickoxid in den Städten

Die Stickstoffdioxid-Immission (NO₂) an verkehrsreichen Messstellen hat sich zwar permanent verbessert, ist aber immer noch viel zu hoch.

NO₂-Jahresmittelwerte (µg/m³)

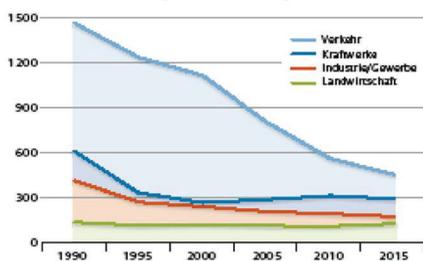


Quelle: Umweltbundesamt (UBA)

Die NO_x-Belastung hat viele Verursacher

Hauptverantwortlich für Stickoxide bleibt der Verkehr, obwohl sich die Werte zuletzt verbesserten. Andere NO_x-Quellen stagnieren.

Stickoxid-Emissionen NO_x (gerechnet als NO₂) in tausend Tonnen



Quelle: UBA

Bild 1: Entwicklung der Schadstoffbelastung in den Städten

2 Abgasgrenzwerte Euro 6, WLTP und RDE

Die Abgasgesetzgebung für Pkw schreibt Grenzwerte für die Schadstoffe Kohlenmonoxid (CO), Kohlenwasserstoffe (HC), Stickoxide (NO_x) und Partikel (PM/PZ) fest. Ein eigener Grenzwert für Stickstoffdioxid (NO₂) wie in der Immissionsgesetzgebung ist hier nicht vorgegeben.

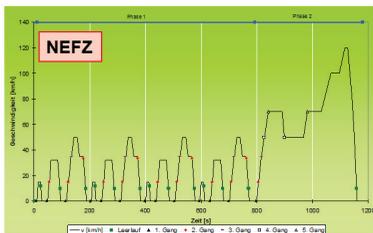
Die Abgasgrenzwerte wurden seit Einführung der Abgasnorm Euro 1 (1992/1993) fortlaufend abgesenkt; die letzten Verschärfungen erfolgten im Rahmen der Euro 6-Norm. Trotz Erfüllung strenger Abgasnormen mit niedrigen Grenzwerten im Typgenehmigungszyklus werden jedoch im realen Fahrbetrieb deutlich mehr Emissionen ausgestoßen – mit der Folge, dass die Immissionsbelastung kaum sinkt.

Um die Anforderungen im Rahmen der Typgenehmigung realitätsnäher zu gestalten, wurden daher ein neues Messverfahren WLTP (Worldwide harmonized Light Duty Test Procedure), als Ersatz für den NEFZ (Neuer Europäischer Fahrzyklus), sowie zusätzliche Messungen im realen Fahrbetrieb (RDE, Real Driving Emissions) mit portabler Messtechnik (PEMS, Portable Emission Measurement Systems) eingeführt. Damit soll sichergestellt werden, dass die bis dato erhebliche Lücke zwischen Prüfstandsmesswerten und realen Emissionen deutlich reduziert wird.

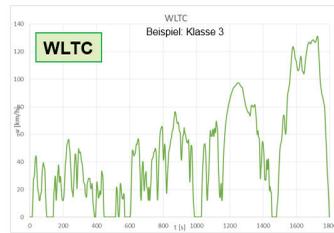
Technische Maßnahmen, wie z.B. Abgasrückführung, NO_x-Speicherkatalysator und SCR-System (Selective Catalytic Reduction) stehen bereits heute zur Verfügung. Bei optimaler Applikation können die NO_x-Emissionen in allen Betriebszuständen deutlich gesenkt werden.

2.1 WLTP – Worldwide harmonized Light-Duty Test Procedure

Um realitätsnähere Verbrauchsangaben zu erhalten, hat die UNECE (United Nations Economic Commission for Europe) im Auftrag der EU-Kommission einen neuen Prüfzyklus WLTC (Worldwide harmonized Light-Duty Test Cycle) und ein neues Messverfahren WLTP (Worldwide harmonized Light-Duty Test Procedure) zur Ermittlung der Schadstoff- und CO₂-Emissionen sowie des Kraftstoff- bzw. Stromverbrauches entwickelt. Bild 2 zeigt einen Vergleich der Testzyklen WLTC und NEFZ.



- Erste Teil (Phase 1): Repräsentiert **innerstädtischen** Fahrbetrieb, Fahrzeug wird kalt gestartet und anschließend im Stop-and-Go-Betrieb mit einer Höchstgeschwindigkeit von 50 km/h gefahren.
- Zweite Teil (Phase 2): Repräsentiert **außerstädtischen** Fahrbetrieb mit einer Höchstgeschwindigkeit von 120 km/h.
- Testdauer: 1.180 Sekunden (ca. 20 Minuten).
- Streckenlänge: ca. 11 km (Phase 1 ca. 4 km, Phase 2 ca. 7 km)
- Durchschnittsgeschwindigkeit: 33,6 km/h (ohne Leerlaufphasen 44,0 km/h).



- WLTP definiert 3 Fahrzeugklassen entsprechend dem Leistungsgewicht P_{nr} (Motorleistung/Leergewicht in W/kg), für die mehrere Messzyklen WLTC festgelegt wurden.
- Dauer der einzelnen Teil-Zyklen ist in den 3 Klassen identisch, sie unterscheiden sich in den Beschleunigungs- und Geschwindigkeitswerten.
 - Klasse 1: Fahrzeuge mit $P_{\text{nr}} \leq 22$ W/kg; Zyklen: low, medium, low
 - Klasse 2: Fahrzeuge mit $22 \text{ W/kg} < P_{\text{nr}} \leq 34$ W/kg; Zyklen: low, medium, high, extra-high
 - Klasse 3: Fahrzeuge mit $P_{\text{nr}} > 34$ W/kg; Zyklen: low, medium, high, extra-high

Bild 2: Vergleich der Testzyklen WLTC und NEFZ

Zur Übernahme des neuen Prüfverfahrens in das Typgenehmigungsverfahren wurde die Verordnung (EU) 2017/1151 vom 1. Juni 2017 erlassen. Diese sieht vor, dass der neue WLTC/WLTP für die Typgenehmigung neuer Pkw-Modelle ab 1. September 2017 (1. September 2018 für neu zugelassene Fahrzeuge) verbindlich festgeschrieben wird, um somit den NEFZ (Neuer Europäischer Fahrzyklus) als Grundlage zur Ermittlung der Schadstoff- und CO₂-Emissionen sowie des Kraftstoff- bzw. Stromverbrauches abzulösen. Die neue Verordnung wurde am 7. Juli 2017 im Amtsblatt der EU veröffentlicht und trat zwanzig Tage später in Kraft (27. Juli 2017). Die bereits für die Typgenehmigung nach NEFZ geltenden Euro 6-Grenzwerte bleiben bestehen.

2.2 RDE – Real Driving Emissions

Um die Abgasemissionen im realen Fahrbetrieb besser abbilden zu können, wurden im Rahmen des europäischen Abgasgesetzgebungsverfahrens neben den Emissionsmessungen im vorgeschriebenen Typgenehmigungszyklus auf Abgasprüfständen direkte Messungen der Emissionen bei Fahrt auf der Straße (RDE, Real Driving Emissions) unter Einsatz portabler Messtechnik (PEMS, Portable Emissions Measurement Systems) aufgenommen. So soll sichergestellt werden, dass die Automobilindustrie Abgastechniken einsetzt, die wirksam Emissionen über alle Betriebszustände verringern.

Drei Gesetzespakete zu RDE wurden bereits verabschiedet. Die Verordnung (EU) 2016/427 vom 10. März 2016 legt die Grundlagen für RDE-Messungen mit portabler

Messtechnik (PEMS) fest. Mit der Veröffentlichung im Amtsblatt der Europäischen Union trat das erste Paket zu RDE rückwirkend zum 1. Januar 2016 in Kraft.

Im 2. Paket, der Verordnung (EU) 2016/646 vom 20. April 2016, wurde ein sogenannter Übereinstimmungsfaktor (CF, Conformity Factor) für Stickoxidemissionen NO_x (zulässige Abweichung der realen Emissionen zum Prüfstandgrenzwert) von 2,1 für neu typgenehmigte Pkw-Modelle ab 1. September 2017 (ab 1. September 2019 für neu zugelassene Fahrzeuge) festgelegt. Der – vom ADAC geforderte – Übereinstimmungsfaktor von 1,5 gilt erst ab 1. Januar 2020 für neu typgenehmigte Pkw-Modelle (ab 1. Januar 2021 für neu zugelassene Fahrzeuge).

Mit dem 3. Paket, der Verordnung (EU) 2017/1154 vom 7. Juni 2017, folgte die Festbeschreibung eines Übereinstimmungsfaktors (CF, Conformity Factor) für Partikelzahlemissionen PN von 1,5 für neu typgenehmigte Pkw-Modelle ab 1. September 2017 (ab 1. September 2018 für neu zugelassene Fahrzeuge).

Das vierte Gesetzespaket zu RDE ist in Vorbereitung. Dieses soll sich u.a. mit den „In-Use-Conformity-Tests“, also Untersuchungen mit bereits im Verkehr befindlichen Fahrzeugen, befassen.

Ein beispielhaftes Messergebnis sowie die zu erfüllenden Kriterien zu Strecken-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsanteilen zeigt Bild 3 (Quelle: Sensors Tech-CT LDV).

Test Validity Check	Result	Criteria	Validity
Urban Distance [km]	34.00	>16	Valid
Rural Distance [km]	28.33	>16	Valid
Motorway Distance [km]	28.45	>16	Valid
Trip Duration (min)	107	>90; <120	Valid
Distance Shares [%]			
Urban, >60 km/hr	37.45	34 ±10; ≥29	Valid
Rural, ≤90 km/hr	31.20	33 ±10	Valid
Motorway, >90 km/hr	31.34	33 ±10	Valid
Urban Driving			
Average speed [km/hr]	29.07	≥15; ≤40	Valid
%urban driving time <1 km/hr	15.74	≥6; ≤30	Valid
Low speed events >10 sec	19	>2	Valid
Motorway Driving			
Maximum Speed	133.72	≥110; ≤160	Valid
%Motorway driving >145 km/hr	0	<3	Valid
time >100 km/hr [min]	13.47	>5	Valid
Misc			
Elevation Difference [m]	10.21	<100	Valid
Cumulative Positive Alt Gain [m]	251.58	< 1200m	Valid
Normal Work Day			Valid

Datasets with Acceleration >0.1 m/s ²			
Urban	1330	>150	Valid
Rural	394	> 150	Valid
Motorway	199	> 150	Valid
Relative Positive Acceleration (RPA)			
Urban	0.174	> 0.129	Valid
Rural	0.0861	> 0.0563	Valid
Motorway	0.025	> 0.0567	Valid
V*A 95th Percentile			
Urban	11.06	≤ 18.39	Valid
Rural	12.10	≤ 24.57	Valid
Motorway	15.20	≤ 28.00	Valid
Vehicle Speed			
Urban Ave Speed [km/hr]	29.07		
Rural Ave Speed [km/hr]	74.49		
Motorway Ave Speed [km/hr]	121.80		

(Source: Sensors Tech-CT LDV)

Bild 3: Beispielhaftes Messergebnis und zu erfüllenden Kriterien zu Strecken-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsanteilen (Quelle: Sensors Tech-CT LDV)

3 ADAC Ecotest

Der ADAC Ecotest wurde im Jahr 2003 eingeführt, um die Verbraucher umfassend über die Umweltfreundlichkeit eines Fahrzeugs zu informieren und dabei die Fahrzeuge über die Gesetzgebung hinaus praxisnah zu testen. Damals einmalig war die Einführung einer Gesamtbewertung des Umweltverhaltens, die nicht nur die CO₂-Emissionen eines Fahrzeugs bewertet, sondern auch den Schadstoffausstoß berücksichtigt.

Mit dem aktuellen Ecotest 4.0 nimmt der ADAC Ecotest erneut eine Vorreiterrolle bei der Bewertung des Umweltverhaltens eines Fahrzeugs ein. Erstmals werden die Messungen auf dem Abgasprüfstand durch reale Straßenmessungen ergänzt. Angepasste Testzyklen auf Basis des WLTC, verschärfte Schadstoffgrenzwerte und eine für alle Fahrzeuge einheitliche, klassenunabhängige Bewertung des CO₂-Ausstoßes kennzeichnen den neuen Ecotest. Das umfassende Testprogramm ermöglicht durch eine übersichtliche Punkte- und Sterne-Bewertung eine qualitative und uneingeschränkt vergleichbare Bewertung des Umweltverhaltens eines Pkw.

Ausführliche Informationen und alle Ergebnisse sind unter www.adac.de/ecotest abrufbar.



Bild 4: ADAC Ecotest Bewertung

3.1 NO_x-Emissionen von Diesel-Pkw

Die Abgasreinigung im Praxisbetrieb nehmen die Fahrzeughersteller unterschiedlich ernst, wie die NO_x-Emissionen nach Hersteller aufgeschlüsselt zeigen. So liegt der durchschnittliche NO_x-Ausstoß der getesteten Fahrzeuge des Renault-Konzerns fast fünfmal so hoch wie der der getesteten BMWs. Der durchschnittliche NO_x-Ausstoß aller betrachteten Dieselmodelle beträgt 0,261 g/km. Dies bedeutet eine Überschreitung des Grenzwerts um das 3,3fache, siehe Bild 5. Bestes Modell ist der Mercedes E 220d mit 0,024 g/km, schlechtestes Modell der Renault Grand Trafic Combi mit 1,042 g/km. Nur 13 Prozent unterschritten im Ecotest den Grenzwert von 0,08 g/km (25 Modelle von 188).

Für die Auswertung wurden die Stickoxid-Emissionen von Euro 6-Dieseln im Zeitraum 2013 bis 2017 im ADAC Ecotest herangezogen. Insgesamt 188 Tests gingen in die Wertung ein und werden nach Herstellern dargestellt.

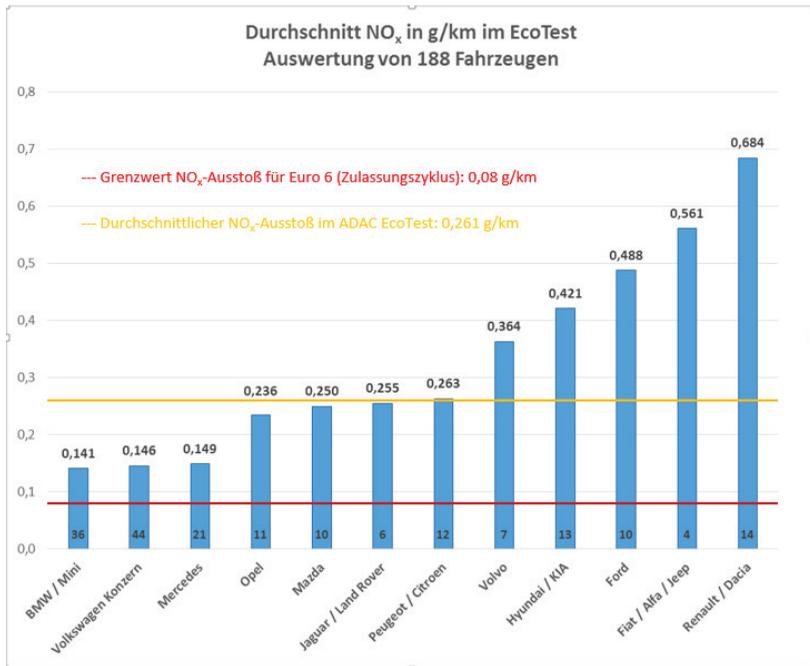


Bild 5: ADAC Ecotest – Auswertung von 188 Dieselmotoren nach Hersteller

Dieselmotoren mit SCR-Systemen (AdBlue®) liefern die besten Ergebnisse im Ecotest. Innermotorische Maßnahmen (nur Mazda) erreichen nicht die guten SCR-Kat-Werte. Motoren mit NO_x-Speicherkat zeigen oft schlechte Ergebnisse im Ecotest. Eine bessere Funktionalität wäre technisch jedoch möglich, wie u.a. die BMW-Resultate zeigen.

3.2 Labordaten im Vergleich zu RDE (Real Driving Emissions)

Vergleicht man die Ergebnisse der Prüfstandsmessungen mit den RDE-Ergebnissen, so zeigt sich, dass RDE ein unverzichtbares Mittel ist, um Prüfstandoptimierungen zu erkennen. Dennoch ist es mit dem aktuellen gesetzlichen RDE-Prüfverfahren nicht möglich, alle Fahrsituationen abzudecken. Der ADAC Autobahntest beweist, dass der NO_x-Ausstoß unter höherer Last deutlich ansteigen kann, auch wenn das RDE-Ergebnis unauffällig ist. Einen Vergleich von sieben Fahrzeugen zeigt Bild 6. So ist der Mercedes E 220d nicht nur auf dem Prüfstand, sondern auch in der Realität immer tadellos sauber. Die weiteren Modelle sind zwar im RDE-Test noch gut, im ADAC Autobahntest steigt der Ausstoß an Stickoxiden aber deutlich an. Insbesondere der Land

Rover ist bei den RDE-Ergebnissen noch durchaus akzeptabel, versagt aber bei den Messungen im Autobahnzyklus (877 mg/km).

	Mercedes	BMW	BMW	BMW	Audi	Volvo	Land Rover
	Mercedes E220d	520d (G30, aktuelles Modell)	520d xDrive (F10 altes Modell)	320d EDE Touring	SQ7 TDI	Volvo S90 D4	Discovery Sport TD4
Schadstoffklasse	Euro6	Euro6	Euro6	Euro6	Euro6	Euro6	Euro6
Hubraum in cm ³	1950	1995	1995	1995	3956	1969	1999
Leistung in kW	143	140	140	120	320	140	110
System zur Abgasreinigung	SCR	SCR + LNT	SCR + LNT	LNT	SCR	LNT	LNT
NO_x Emissionen							
WLTP (kalt) g/km	0,033	0,005	0,011	(0,01)*	0,048	0,049	0,027
Grenzwertüberschreitung	0,4	0,1	0,1	(0,1)*	0,6	0,6	0,3
RDE g/km	0,016	0,005	0,090	0,162	0,038	0,113	0,124
Grenzwertüberschreitung	0,2	0,1	1,1	2,0	0,5	1,4	1,6
ADAC Autobahnzyklus g/km	0,035	0,164	0,398	(0,26)*	0,321	0,470	0,877
Grenzwertüberschreitung	0,4	2,1	5,0	(3,3)*	4,0	5,9	11,0

Bild 6: ADAC Ecotest – Vergleich Labordaten/RDE

3.3 Ergebnisse der ersten Euro 6d-TEMP Diesel-Pkw

Die ersten getesteten Diesel-Pkw mit Euro 6d-TEMP Norm liefern überzeugende Ergebnisse im ADAC Ecotest und zeigen, dass Diesel-Motoren so sauber sein können wie gefordert.

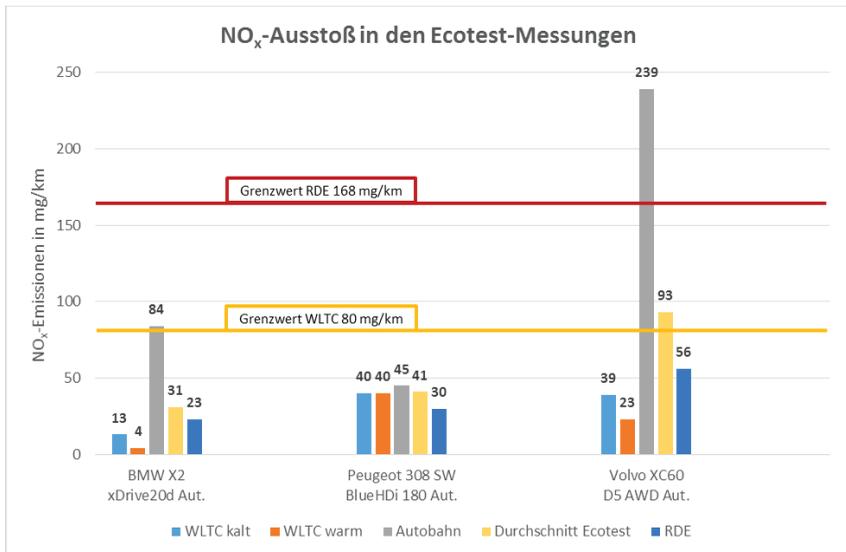


Bild 7: ADAC Ecotest – Ergebnisse der ersten Euro 6d-TEMP Diesel-Pkw

Die Werte sind beim BMW X2 xDrive20d Steptronic und Peugeot 308 SW 2.0 BlueHDi 180 EAT8 durchgehend niedrig und liegen praktisch überall unter dem Grenzwert von 80 mg/km. Nur der Volvo XC60 D5 AWD Geartronic leistet sich im Autobahnabschnitt eine Auffälligkeit – u.a. aufgrund seines hohen Testgewichts von 2,2 Tonnen muss er für die vorgegebenen Beschleunigungen (mehrmals von 80 oder 100 auf 130 km/h) länger mit Vollast fahren, währenddessen der Schadstoffausstoß hoch ausfällt. Auf der Straße dagegen zeigt sich, dass alle Testfahrzeuge sogar den Prüfstands-Grenzwert (80 mg/km) weit unterschreiten können, obwohl für die Euro 6d-TEMP Einhaltung ein RDE-Wert bis zu 168 mg/km erlaubt wäre, siehe Bild 7.

Die guten Ergebnisse der Straßenmessungen sind auch deshalb hervorzuheben, weil sie bei niedrigeren Temperaturen zwischen 6,8 °C (BMW) und 13,3 °C (Peugeot) gemessen wurden. Die Abgasreinigung beschränkt sich nicht auf sogenannte „Therfenster“ im Bereich der vorgesehenen Prüfstandstemperatur (20 bis 30 °C).

4 Effekte durch Software-Update (Nachbesserung) und Nachrüstung bei Diesel-Pkw

Zur Reduzierung der NO_x-Emissionen von Euro Diesel-Pkw (Euro 5 und Euro 6) im Bestand stehen derzeit Software-Updates sowie SCR-Nachrüstsysteme zur Diskussion.

4.1 Software-Update

Der ADAC hat im Zuge des Software-Updates von VW verschiedene Untersuchungen am Euro 5-Motor EA189 vor und nach dem Update durchgeführt.

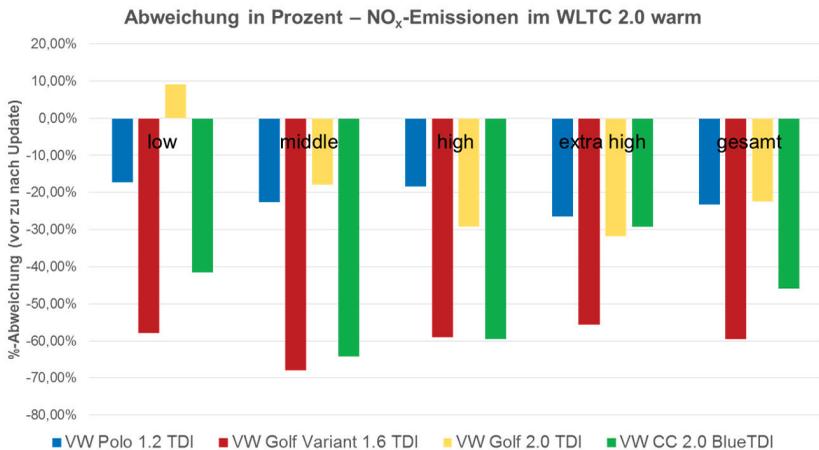


Bild 8: NO_x-Minderung durch Software-Update am Beispiel VW

Mit den Testfahrzeugen wurden vor und nach dem Update jeweils drei Messzyklen gefahren. Zum einen eine Messung nach Homologationsvorschriften im NEFZ (Neuer Europäischer Fahr Zyklus), um die korrekte Funktion des Motors und eventuelle Abweichungen exakt feststellen zu können. Darüber hinaus wurde jeweils vorher und nachher ein „Weltzyklus“ WLTC und ein Autobahnzyklus nach ADAC Ecotest im ADAC Abgaslabor gefahren.

Durch reines Software-Update hat der ADAC im realitätsnahen Weltzyklus (WLTC) bei VW (VW-Motor EA189 mit 1.2 l und VW-Motor EA189 mit 2.0 l) Minderungen von 20 bis 25 Prozent ermittelt. In Kombination mit einem verbesserten Strömungsgleichrichter beim 1.6 l Motor (EA 189) oder bei Systemen mit SCR-System und AdBlue® (EA189 Blue TDI 2.0 l) erreichte ein Software-Update 50 bis 60 Prozent Minderung in verschiedenen Fahrzuständen, siehe Bild 8. Negative Einflüsse auf Kraftstoffverbrauch, Leistung und Fahrbarkeit wurden nicht festgestellt.

4.2 SCR-Nachrüstung

Das Verkehrsministerium Baden-Württemberg förderte ein Projekt des ADAC Württemberg, das die Machbarkeit und Wirksamkeit einer hardwareseitigen Nachrüstung von Euro 5-Dieselfahrzeugen zur Reduzierung der Stickoxidemissionen untersuchte. Ziel war es, die Wirksamkeit dieser Nachrüstungen unter verschiedenen Bedingungen und deren Realisierungsmöglichkeiten zu bewerten.

Die Ergebnisse der vier untersuchten Fahrzeuge (zwei Pkw: Mercedes B 180 CDI, Opel Astra 1,7 CDTI und zwei leichte Nutzfahrzeuge: Fiat Ducato 130 Multijet 2,3 D, VW T5 Multivan 2.0 TDI) zeigen, dass Hardware-Nachrüstlösungen zu einer deutlichen Reduktion der Stickoxidemissionen führen können. Wie hoch die NO_x-Reduktion ausfällt, hängt vor allem vom Fahrprofil ab. Denn, das wichtigste Kriterium für die Funktionsfähigkeit des SCR-Systems ist die Abgastemperatur. Es wird so gut wie bei allen Nachrüstlösungen deutlich, dass direkt nach dem Kaltstart keine hohen Reduktionsraten möglich sind. Erst mit steigender Abgastemperatur können die Stickoxidemissionen wirkungsvoll reduziert werden. Die durchgeführten WLTC-Messungen mit Kaltstart zeigen im Stadtbetrieb NO_x-Reduktionsraten zwischen 40 % und 60 Prozent, siehe Bild 9. Mit entsprechender Weiterentwicklung sollten in der Serienanwendung auch nach Aussage der Nachrüster Reduktionsraten von mindestens 50 Prozent möglich sein. Das Kaltstart-Szenario adressiert den typischen Stadtbewohner, der seine Fahrt in der Innenstadt beginnt und erstmals mit kaltem Motor unterwegs ist. Aber auch Pendler werden adressiert, da diese zwar morgens mit betriebswarmem Motor in die Innenstadt pendeln, aber am Abend mit kaltem Motor die Innenstadt wieder verlassen. Unter günstigen Fahr- und Temperaturbedingungen sind NO_x-Reduktionsraten von über 70 Prozent möglich. Das Warmstart-Szenario bildet den typischen Fahrer ab, der aus dem Umland in die Innenstadt fährt und dort mit betriebswarmem Motor unterwegs ist. Aber auch typischer Lieferverkehr, der ganztägig in der Innenstadt fährt, wird mit diesem Szenario abgebildet.

Der Test zeigt, dass Nachrüstungen technisch möglich sind. Die Gesamtkosten für ein SCR-Nachrüstsystem werden inklusive Einbau auf 1.400 Euro bis 3.300 Euro geschätzt. Vertrieb und Einbau sind sowohl über die qualifizierte Fachwerkstatt als auch direkt über den Fahrzeughersteller denkbar. Die Markteinführung erster SCR-Nachrüstsysteme wäre laut Nachrüster zeitnah möglich, es fehlen aber gesetzliche Rahmenbedingungen. Jetzt ist der Gesetzgeber gefragt, die notwendigen Rahmenbedingungen und die Zulassungsanforderungen für Nachrüstsysteme festzuschreiben.

Für eine serienmäßige Umsetzung sind darüber hinaus eine modellspezifische Anpassung der Systeme und deren Erprobung im Dauerbetrieb erforderlich. Dies erfordert noch Entwicklungszeit und vor allem die Unterstützung der Fahrzeughersteller, denn die Nachrüster müssen den Kunden eine entsprechende Garantie geben. Der komplette Testbericht ist unter www.adac.de/scr abrufbar.

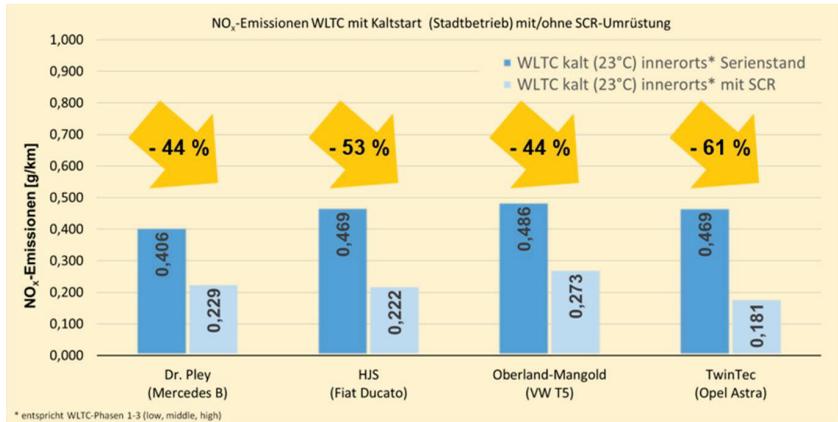


Bild 9: NO_x-Reduzierung an Euro 5-Dieselfahrzeugen durch Hardwarenachrüstung (SCR und AdBlue®)

5 Fazit

Wer sicher gehen will, dass er auch in Zukunft mit seinem Diesel noch in Umweltzonen fahren darf, sollte sich für einen Pkw mit der Schadstoffklasse Euro 6d-Temp entscheiden. Eine Übersicht der bereits bestellbaren Pkw-Modelle (Quelle: ADAC Autokatalog) ist unter www.adac.de/abgas abrufbar.

Für den ADAC steht die Gesundheit der Menschen an erster Stelle. Entsprechend sollten alle Maßnahmen konsequent ausgeschöpft werden, die dazu geeignet sind, die Luft in unseren Städten sauberer zu machen und Fahrverbote oder andere Einschränkungen wie blaue Plaketten zu vermeiden.

Aus Sicht des ADAC kann dies nur über ein gesamthaftes Maßnahmenpaket gelingen, das Software-Updates ebenso umfasst wie Hardware-Nachrüstungen oder die zahlreichen verkehrsinfrastrukturellen Möglichkeiten, etwa durch eine intelligente Verflüssigung des Verkehrs, Verbesserung des ÖPNV oder durch die Umrüstung von Vielfahrer-Flotten in den Städten. In keinem Fall dürfen Autofahrer für Updates und Nachrüstungen durch die Hersteller zusätzlich zur Kasse gebeten und finanziell belastet werden.

Ob lokale Fahrverbote zusätzlich zur Nutzung aller anderen geeigneten Maßnahmen sinnvoll und verhältnismäßig sind, muss vor Ort in den Luftreinhalteplänen anhand der spezifischen Gegebenheiten abgewogen werden. Generelle Fahrverbote auf Basis einer Ausweitung der Plakettenregelung lehnt der ADAC als unverhältnismäßig ab.

Biogenic and Synthetic Fuels – Chances and Risks from ReFuels

Thomas Koch, U. Wagner, J. Sauer, O. Toedter

Kurzfassung

Die Reduzierung von CO₂-Emissionen ist zu dem langfristig bedeutendsten Treiber für technologische Entwicklungen geworden. Auch die Politik ist dadurch angehalten, die Verminderung der CO₂-Emissionen weiter voranzubringen. Dabei ist der Anstieg des CO₂-Gehalts in der Atmosphäre der Hauptansatzpunkt für weitere Bemühungen, die CO₂-Emissionen zu senken. Fig. 1 zeigt diesen wohlbekannten gemessenen Verlauf.

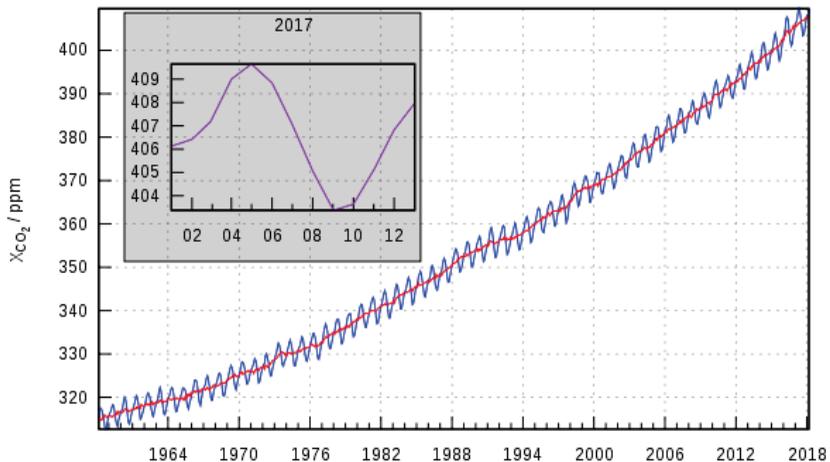


Figure 1: Increase of CO₂ „Keeling-Kurve“ of Carbon Dioxide Concentration (Measuring Station Mauna Loa)

Source:https://de.wikipedia.org/wiki/Kohlenstoffdioxid_in_der_Erdatmosph%C3%A4re#/media/File:Mauna_Loa_Carbon_Dioxide.svg

Besides of CO₂ reduction, other impacts also influence the ongoing discussion. The dependency from external crude oil sources, located in overseas regions, should be reduced. Additionally, a challenging new legislation offers the chance to further push new technology and low emission concepts.

Therefore, a long-term CO₂ emission reduction of more than 85 % is scheduled. In 2015, at the UN climate conference in Paris concrete goals were agreed and industrialized countries will have to reduce their CO₂ emission rapidly to achieve the 85% reduction. The EU Energy Roadmap 2050 (as agreed by EU Commission) splits the CO₂ reduction targets to application sectors with transport as a significant part of it. Each country reacts to this demand with local plans as e.g. the German Climate Action Plan 2050. According to this plan, the transport sector (including long distance transport, ship, railway and individual transport) has to reduce CO₂-emissions by 55% until 2030 and 95% by 2050. Regenerative Fuels (ReFuels) will contribute an important portion in order to fulfill these extremely challenging goals. ReFuels include eFuels as well as bioFuels. For both types a synthesis gas is required to contribute the hydrogen portion. For biofuels the carbon content is delivered out of feedstock. eFuels are based on electrolysis in order to produce hydrogen and as a consequence they require a different carbon source.

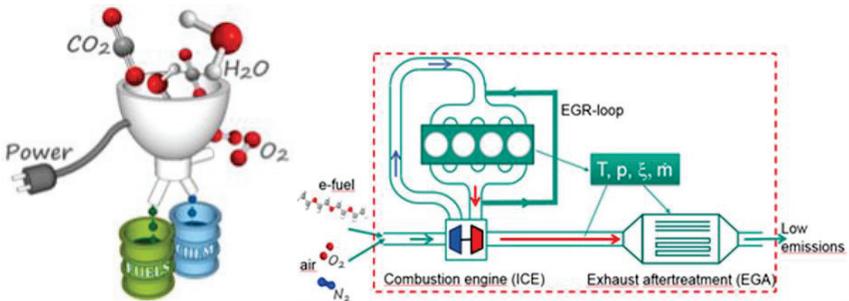


Figure 2: Multiple paths and sources are necessary to provide the ReFuels supply chain; these have to be combined with adapted combustion and exhaust gas aftertreatment

Established combustion processes are well optimized with regard to efficiency, raw emissions and the interaction with exhaust gas aftertreatment. The new fuels will implement new challenges as well as new possibilities. Oxygenated fuels show low soot emission in combination with reduced heating values. The transition from fossil fuels to ReFuels must be achieved with an interdisciplinary approach to meet these demands. Figure 2 shows some facts combustion engineers have to take care especially for the strong interaction with the developers of exhaust gas aftertreatment.

Sector coupling and research activities of eFuels are part of the long term strategy in Germany. In the European Union biofuel research activities predominate. Also in the United States of America the biogenic path is preferred to reduce CO₂-emissions. Challenges, research activities and potential of ReFuels will be presented.

Additionally, the ReFuel activities support the ambitions to improve energy security. Therefore, all ReFuels activities operate in a multi-dimensional context and interact with the other CO₂-relevant sectors as well as the political strategies.

Intensive research activities are necessary in order to ensure the necessary amount of sustainable biomass as well as to optimize the complete ReFuel process chain – from biomass to biofuel product.

Stickoxidgrenzwert: Wurde er richtig abgeleitet?

Jürgen Bünger, J. Krahl

Abstract

Diesel engine emissions (DEE) are credited with contributing to various health risks of the respiratory and pulmonary as well as the cardiovascular system. Epidemiological studies indicate that acute and chronic effects of DEE are largely associated with particulate emissions. Therefore, the limit values for particulate matter have been greatly reduced in recent years. At the same time, the values for nitrogen oxides (NO_x) were also reduced by a factor of 20, without the scientific data showing clear indications of the harmfulness of nitric oxide concentrations occurring in the environment. This article presents the development and the current status of the reduction of pollutants in DEE as well as the current discussion of nitric oxide against the background of the epidemiological and experimental study situation.

In conclusion, the scientific data suggest that exposure to diesel exhaust has been sharply reduced in recent decades. Epidemiological environmental studies of NO₂ find increased health risks for people with respiratory and cardiovascular disease, but are based on obsolete exposure data, are also inconsistent and influenced by parallel exposures (especially particles). Experimental studies on NO₂ find increased risks only at much higher concentrations. A critical examination of the available epidemiological data shows that there is no evidence for an environmental NO_x limit of 40 µg / m³ air. The experimental data should be used to derive the environmental limit value for NO_x.

1 Entwicklung und aktueller Stand der Reduktion von Stickoxiden in Dieselmotoremissionen (DME)

DME sollen zu verschiedenen kardiovaskulären und pulmonalen Gesundheitsrisiken beitragen (Steiner et al. 2016). Aus zahlreichen toxikologischen und epidemiologischen Studien geht hervor, dass akute und chronische Effekte von DME vor allem mit den Partikelemissionen assoziiert sind. Die Humandaten beruhen allerdings vorwiegend auf epidemiologischen Studien, denen Expositionen am Arbeitsplatz aus den 1950er bis 1980er Jahren zugrunde liegen.

Seit 1992 werden die zulässigen Dieselabgaskonzentrationen von Neufahrzeugen in der EU reglementiert und die Emissionsgrenzwerte seitdem immer weiter reduziert. Tabelle 1 zeigt die Verminderung der zulässigen Emissionen für Lastkraftfahrzeuge (Lkw). Über den gesamten Zeitraum beträgt die Reduktion für die Partikelmasse (PM) mehr als den Faktor 60. Der Emissionsgrenzwert für Stickoxide (NO_x) wurde um den Faktor 20 abgesenkt. Die Absenkung der Grenzwerte für Personenkraftwagen (nicht dargestellt) war ähnlich groß.

Tab. 1: In der EU zulässige Emissionen für Kohlenmonoxid (CO), Kohlenwasserstoffe (HC), Stickoxide (NO_x), Partikelmasse (PM) am Beispiel der Lastkraftfahrzeuge (Lkw) bis Euro VI (alle Angaben in g/kWh).

Motorenprüfstand								
Norm	Euro I	Euro II	Euro II	Euro III	Euro IV	Euro V	Euro VI	Faktor der Absenkung
Typprüfung	1/1992	10/1996	10/1998	10/2000	10/2005	10/2008	01/2013	
Testzyklus	ESC R-49	ESC R-49	ESC R-49	ESC	ESC	ESC	WHSC	
CO	4,5	4,0	4,0	2,1	1,5	1,5	1,5	3
HC	1,1	1,1	1,1	0,66	0,46	0,46	0,13	8,5
NO_x	8,0	7,0	7,0	5,0	3,5	2,0	0,40	20
PM	0,612	0,25	0,15	0,10	0,02	0,02	0,01	61,2

Parallel zu großen Anstrengungen der Hersteller von Dieselfahrzeugen und Abgasminderungstechnologien, diese Grenzwerte einzuhalten, wurden auch die Kraftstoffe verbessert (z.B. Senkung des Schwefelgehaltes von Dieseldieselkraftstoff von >500 ppm auf <10 ppm) und es wurden neue biogene (z.B. Rapsölmethylester) und mineralöl-basierte Kraftstoffe entwickelt. Wie weit moderne Motoren, Kraftstoffe und Abgasnachbehandlungssysteme die Expositionen von Dieselfahrzeugen reduziert haben, ist aktuell Gegenstand wissenschaftlicher Diskussion. Um die Datenlage in dieser Frage zu verbreitern, wurden die Ergebnisse von 25 Studien im Zeitraum 1993 - 2012 unserer Arbeitsgruppe vergleichend ausgewertet (Bünger et al. 2014).

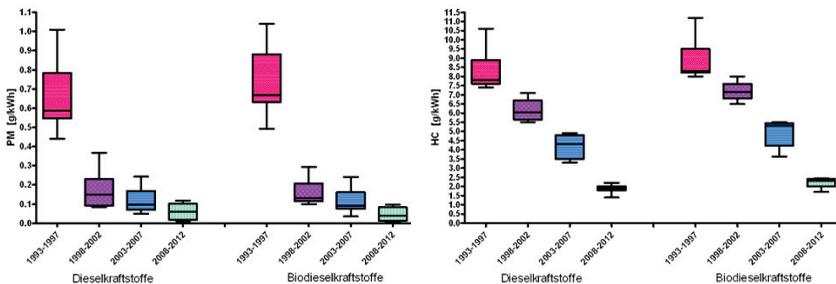


Bild 1: Reduktion von Partikelmasse (PM) und Stickoxiden (NO_x) im Dieseldieselgas im Zeitverlauf.

Dass diese Maßnahmen einen sehr deutlichen Effekt auf den Verlauf der Umweltemissionen zeigen, lässt sich aus der Graphik (Bild 2) des UBA ablesen (UBA 2016). Für Stickoxide sind die spezifischen Emissionen von Lkw seit 1995 (100%) auf 19,5% im Jahr 2014 gefallen. Eine noch stärkere Reduktion auf 9,7% findet sich für Feinstaub als Parameter der Partikelmasse. Die Daten für Pkw sind hier nicht dargestellt, sehen aber sehr ähnlich aus.

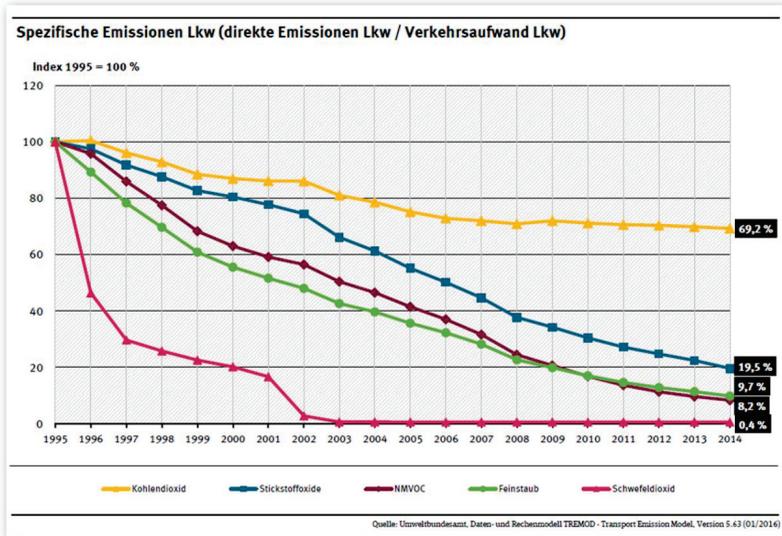


Bild 2: Reduktion von gesetzlich limitierten Schadstoffen im Dieselabgas von Lkw im Zeitverlauf von 1995 bis 2014 (Umweltbundesamt 2016).

2 Die aktuelle Stickoxiddiskussion

Stickoxide (NO_x) setzen sich zusammen aus Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO_2). Im Verhältnis zum auch im Körper selbst gebildeten NO ist NO_2 wesentlich stärker wirksam. Es löst vor allem Irritationen der oberen Atemwege aus. Für die Bewertung von Gesundheitsrisiken wird daher in der Regel NO_2 herangezogen und NO vernachlässigt, auch weil NO in der Atmosphäre rasch zu NO_2 umgewandelt wird. Laut TRGS 900 (2018) beträgt der aktuelle Arbeitsplatzgrenzwert (AGW) für NO_2 in Deutschland $0,95 \text{ mg/m}^3$ ($0,5 \text{ ppm}$). In den meisten europäischen Staaten liegt er bei 3 ppm . Der Umweltgrenzwert liegt mit einem Jahresmittelwert von $0,04 \text{ mg/m}^3$ ($0,02 \text{ ppm}$) um den Faktor 24 niedriger als der deutsche AGW. Wie werden solche Werte abgeleitet?

Um auch Kranke, Kinder, Säuglinge und andere besonders empfindliche Personengruppen zu schützen, wird in der Umwelt mit einer theoretisch möglichen Exposition von 24 h im Vergleich zum Arbeitsplatz mit einer Expositionsdauer von ca. 8 h in den meisten Fällen um einen Sicherheitsfaktor von 10 heruntergerechnet. Wie kam nun im Fall der NO_x die wesentlich stärkere Grenzwertabsenkung durch die EU und in der Folge in Deutschland zustande?

Dazu ist ein Blick in die Publikationen der Weltgesundheitsorganisation (WHO) der letzten Jahrzehnte nötig, die sowohl zu Kurzzeit- als auch Langzeitexpositionen Stellung genommen hat. Die Dokumente der Weltgesundheitsorganisation (WHO) und der

Europäischen Union (EU) werden gemeinsam betrachtet, da die EU auf eigene gesundheitliche Bewertungen verzichtet und sich auf die Bewertungen und Ableitungen der WHO stützt.

2.1 WHO/EU zu NO₂-Kurzzeiteexpositionen

Im Jahr 1997 veröffentlichte die WHO in den Environmental Health Criteria (1997) Daten zu Effekten von kurzen Expositionen durch NO₂ in experimentellen Studien.

Tab. 2: Kurzzeiteffekte von Stickstoffdioxid (NO₂).

Konzentration (ppm)	Expositionsdauer (h)	Effekte
0.2-0.3	0.5-2.0	Trend zu erhöhter Atemwegsreagibilität. Keine Effekte in einigen Studien bis zu 4 ppm NO ₂ . Geringer Abfall (4-6%) von FEV ₁ oder FVC bei Asthmatikern.
0.3	3.7	Geringer Abfall (5-9%) von FVC und FEV ₁ bei COPD-Patienten unter geringer Belastung. Keine Effekte bei anderen Studien bei 0.5 bis 2 ppm NO ₂ .
1.5-2.0	2.0-3.0	Erhöhte Atemwegsreagibilität bei gesunden Probanden. Keine Effekte in anderen Studien bei 2 bis 4 ppm.
> 2.0	1.0-3.0	Erhöhter Atemwegswiderstand bei gesunden Probanden. Keine Effekte in anderen Studien bei 2 bis 4 ppm.

WHO, Environmental Health Criteria, 1997

In den WHO-Air Quality Guidelines (2000) wurde bewertet, dass - trotz vieler akuter kontrollierter Humanstudien - keine Evidenz für eine Dosis-Wirkungsbeziehung der NO₂-Exposition bei in der Umwelt auftretenden Expositionen besteht: „For acute exposures, only very high concentrations (1990 µg/m³; > 1 ppm) affect healthy people“. Asthmatiker und Patienten mit COPD werden zwar als eindeutig empfindlicher angesehen, aber auch hier finden sich Effekte erst bei 375–565 µg/m³ (0.20 bis 0.30 ppm) als eindeutiger LOEL (Lowest Observed Effect Level). Auf der Basis dieser Humandaten wird ein Stundenwert („1-hour guideline“) von 200 µg/m³ vorgeschlagen. Die derzeit gültigen Leitlinien „Air Quality Guidelines“ mit Empfehlungen für gesundheitsbasierte Richtwerte sowie deren wissenschaftliche Begründung wurden 2006 von der WHO herausgegeben. Auch neuere Daten ergaben danach keine Evidenz, den empfohlenen Wert zu ändern: „The current scientific literature has not accumulated evidence to change from the WHO guideline value of 200 µg/m³ for 1-hour nitrogen dioxide concentration“ (WHO 2006). Die US-EPA (2016) stellte auf Basis der neuesten verfügbaren Meta-Analyse von Brown (2015) starke Unsicherheiten in Bezug auf Dosis-Wirkungsbeziehungen fest, indem sie das Potenzial klinisch relevanter Erhöhungen des Atemwegswiderstands bei einigen Asthmatikern nach Exposition gegenüber NO₂-Konzentrationen in einem weiten Bereich zwischen 100 und 530 ppb beziffert.

2.2 WHO/EU und US-EPA zu NO₂-Langzeiteexpositionen

Insgesamt stellen sowohl WHO/EU als auch die Umweltbehörde der USA (US-EPA 2016) einen begrenzten Wissensstand zu Morbidität und Mortalität durch NO₂ wegen

der unklaren Abgrenzung der NO₂-Effekte zu anderen Luftschadstoffen fest, insbesondere wegen der hohen Korrelation zu Partikelemissionen; „However, since nitrogen dioxide is an important constituent of combustion-generated air pollution and is highly correlated with other primary and secondary combustion products, it is unclear to what extent the health effects observed in epidemiological studies are attributable“ (WHO 2006). Die EPA in den USA kommt zum Schluss, dass ein kausaler Zusammenhang zur Mortalität nicht abzuleiten sei (US-EPA 2016). Die EU hat trotzdem eine quantitative Risikoabschätzung zur Mortalität durch NO₂ durchgeführt (12.860 vorzeitige Todesfälle und 133.800 verlorene Lebensjahre). Das Ergebnis sei aber stark vom angenommenen „Schwellenwert“ abhängig.

Im Vergleich von Stickoxiden (NO₂) mit Partikelemissionen (PM_{2,5}) sind sich US-EPA und WHO/EU einig, dass für PM_{2,5} der Zusammenhang zwischen Langzeitexposition und der Gesamtmortalität sehr gut abgesichert ist und als kausal angesehen werden kann, während die Belege beim NO₂ schwächer sind. WHO/EU teilt die Einschätzung der US-EPA, dass die Datenlage unsicher ist, weil NO₂ möglicherweise nur das gesamte Schadstoffgemisch repräsentiert. Sie halten aber dennoch eine quantitative Risikoabschätzung für NO₂ „mit Unsicherheiten“ für möglich.

Auf dieser Basis leitete die EU einen Grenzwert von 40 µg/m³ für NO₂ ab. Dagegen blieb die US-EPA weiter bei 100 µg/m³.

3 Epidemiologische und experimentelle Studienlage

In einem umfassenden Review von Latza und Koautoren (2009) wurden 112 experimentelle und epidemiologische Studien zu Wirkungen von NO₂-Expositionen auf den Menschen bewertet.

Von den epidemiologischen Studien war nur in einer Studie eine Kurzzeitexposition (1 h) von 200 µg NO₂/m³ (0,1 ppm) mit einer erhöhten Mortalität bei Patienten mit schwerem Asthma assoziiert. In 5 Studien war eine Langzeitexposition durch ca. 40 µg NO₂/m³ (0,02 ppm) assoziiert mit Atemwegssymptomen und -erkrankungen. Allerdings bestanden Einschränkungen bei der Studienqualität.

Bei den experimentellen Studien mit Kurzzeitexpositionen von mehr als 500 mg/m³ NO₂ fand sich eine widersprüchliche Evidenz in zwei Humanstudien. Die Resultate für inflammatorische Wirkungen waren inkonsistent. Keine Effekte fanden sich bei Lungenfunktion und Symptomen. Expositionen von älteren Personen mit und ohne COPD und gesunden Probanden (n = 24) mit 750 mg/m³ NO₂ zeigte keinerlei Atemwegseffekte.

In einem neueren Review (Mills et al. 2015) wurde ein NO₂-Anstieg von 10 µg/m³ in 24 h mit Erhöhungen in Verbindung gebracht mit einem Anstieg der kardiovaskulären und respiratorischen Mortalität von 0,88% bzw. 1,09% und mit erhöhten Krankenhauseinweisungen von 0,57% für Erkrankungen der Atemwege und von 0,66% für kardiovaskuläre Krankheiten. Abgesehen von den sehr niedrigen ermittelten Risiken kommen auch diese Autoren zu der Einschränkung, dass die Daten unsicher sind, „since there are close correlations between NO₂ and other air pollutants in the mixture of traffic-related pollutants, especially PM“.

In einer aktuellen experimentellen Studie (Brand et al. 2016) wurden 25 Personen für 3 h mit NO₂-Konzentrationen von 0,0 ppm, 0,1 ppm, 0,5 ppm und 1,5 ppm in einer „randomized blinded crossover study“ exponiert. Lungenfunktion, Diffusionskapazität und exhalierendes Stickoxid wurden gemessen und inflammatorische Marker in Blut, Nasalsekret, induziertem Sputum und Atemkondensat bestimmt. Die Resultate der Studie

ergaben bei keiner Person einen Anhalt für akute adverse Gesundheitseffekte gegenüber diesen Konzentrationen.

Wie kommen nun die ausgeprägten Unterschiede in den epidemiologischen Studien mit Effekten ab $40 \mu\text{g NO}_2/\text{m}^3$ (0,02 ppm) und den experimentellen Studien zustande, in denen erst ab ca. 10fach höheren Expositionen erste Effekte auftreten? Die Antwort geben die unterschiedlichen Designs der Studien. Während in den epidemiologischen Studien neben NO_2 auch eine unübersehbar große Zahl anderer Luftschadstoffe aus unterschiedlichsten Quellen gleichzeitig auf die betroffenen Personen einwirken, können diese Einflussgrößen bei experimentellen Studien in sogenannten Expositionslabors ausgeschlossen werden. Hier ist eine sichere Zuordnung der Effekte zu NO_2 möglich, während in den genannten epidemiologischen Studien die Effekte auch durch die anderen gleichzeitig in der Luft vorhandenen Schadstoffe ausgelöst werden können. Diese sind zum Teil wie in Bild 3 so hoch korreliert - vor allem NO_x und ultrafeine Partikel (UFP), dass eine Differenzierung statistisch nicht möglich ist.

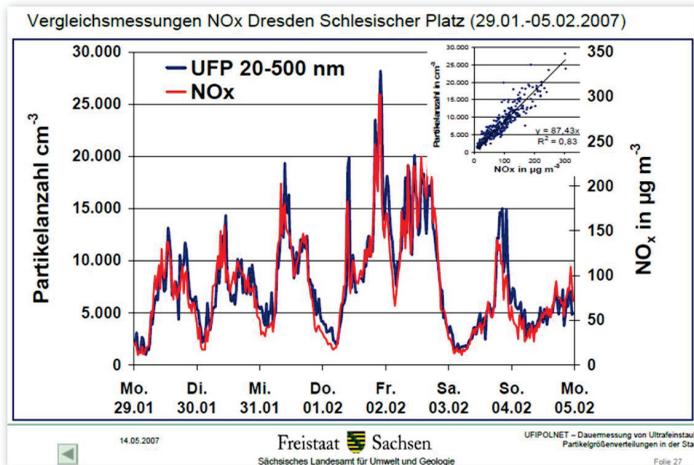


Bild 3: Quantitative und temporale Korrelation von Stickoxiden (NO_x) und ultrafeinen Partikeln (UFP) bei Messungen in Dresden.

Nach den vorliegenden wissenschaftlichen Erkenntnissen ist es mehr als wahrscheinlich, dass die Effekte des NO_2 in epidemiologischen Studien durch die fehlende Abgrenzung zu anderen Einflüssen überschätzt werden. Als bislang einzige versuchten Mills et al. (2016), die Einflüsse der Partikelemissionen auf die Ergebnisse für das NO_2 zu quantifizieren, mussten aber auch hier Unsicherheiten zur Kausalität basierend auf der engen Korrelation von NO_2 und Partikeln einräumen. Auch Wichmann (2018) schreibt in seiner Expertise „Gesundheitliche Risiken durch Stickstoffdioxid“ zur Vorlage bei der Interministeriellen Arbeitsgruppe „Luftreinhaltung“ der Landesregierung Baden-Württemberg, dass der Vergleich der NO_2 -Exposition mit der Exposition gegenüber anderen verkehrsabhängigen Schadstoffen ergibt, dass NO_2 , ultrafeine Partikel und Ruß (elementarer Kohlenstoff) stark miteinander korreliert sind. Daher sei die Zuordnung der gesundheitlichen Auswirkungen zu einem dieser Stoffe nur begrenzt möglich.

Ähnlich äußerte sich auch die MAK-Kommission schon 2010: „Seit der Begründung 2003 sind etliche neue Studien zum Einfluss einer möglichen umweltbedingten Exposition (Luftverschmutzung) oder arbeitsplatzbedingten Exposition gegen NO₂ veröffentlicht worden. Aufgrund der Mischexposition erlauben diese Studien aber keine valide Aussage zur alleinigen Wirkung von NO₂, weshalb sie hier nicht dargestellt sind.“

4 Fazit

Die Expositionen durch Dieselaabgase sind in den letzten Jahrzehnten stark gesenkt worden. Der weitaus größte Teil der epidemiologischen Studien basiert auf Expositionsdaten aus der Zeit vor der Festlegung/Senkung der Abgasgrenzwerte für Dieselfahrzeuge. Ob das derzeitige Emissionsniveau an Arbeitsplätzen und in der Umwelt noch ein erhöhtes Gesundheitsrisiko darstellt, ist unklar.

Epidemiologische Umweltstudien zu NO₂ finden erhöhte Gesundheitsrisiken für Personen mit Atemwegs- und Herz-Kreislaufkrankungen, sind aber inkonsistent und beeinflusst durch parallele hoch korrelierte Expositionen (Partikel). Experimentelle Studien zu NO₂ finden erhöhte Risiken erst bei sehr viel höheren Konzentrationen. Zur Ableitung des Umweltgrenzwerts für NO₂ sollten die experimentellen Daten herangezogen werden.

Literatur

- [1] Brand P, Bertram J, Chaker A, Jörres RA, Kronseder A, Kraus T, Gube M (2016) Biological effects of inhaled nitrogen dioxide in healthy human subjects. *Int Arch Occup Environ Health* 89:1017-1024.
- [2] Brown JS (2015) Nitrogen dioxide exposure and airway responsiveness in individuals with asthma. *Inhal Toxicol* 27:1-14.
- [3] Bünger J, Westphal G, Brüning T, Schröder O, Munack A, Krahl J (2014) Dieselmotoremissionen und ihre biologischen Effekte - Ein Überblick aus 20 Jahren eigener Studien. „Kraftstoffe von heute und morgen“, Tagungsband zum 6. Biotreibstoffsymposium, Herausgeber: Krahl J, Munack A, Eilts P, Bünger J. Cu-villier Verlag, Göttingen, Germany.
- [4] Latza U, Gerdes S, Baur X (2009) Effects of nitrogen dioxide on human health: systematic review of experimental and epidemiological studies conducted between 2002 and 2006. *Int J Hyg Environ Health* 212, 271-287.
- [5] MAK, The MAK-Collection for Occupational Health and Safety, 49. Lieferung (2010) Stickstoffdioxid, Nachtrag 2010.
- [6] Mills IC, Atkinson RW, Kang S, Walton H, Anderson HR (2015) Quantitative systematic review of the associations between short-term exposure to nitrogen dioxide and mortality and hospital admissions. *BMJ Open*;5:e006946.
- [7] Mills IC, Atkinson RW, Anderson HR, Maynard RL, Strachan DP (2016) Distinguishing the associations between daily mortality and hospital admissions and nitrogen dioxide from those of particulate matter: a systematic review and metaanalysis. *BMJ Open*;6:e010751.



- [8] Steiner S, Bisig C, Petri-Fink A, Rothen-Rutishauser B (2016) Diesel exhaust: current knowledge of adverse effects and underlying cellular mechanisms. Arch Toxicol 90:1541–1553.
- [9] TRGS 900, Technische Regeln für Gefahrstoffe, Arbeitsplatzgrenzwerte, BArBI Heft 1/2006 S. 41-55 geändert und ergänzt: GMBI 2018 S.542-545
- [10] U.S. EPA. Integrated Science Assessment (ISA) for Oxides of Nitrogen – Health Criteria (Final Report, 2016). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, EPA/600/R-15/068, 2016.
- [11] WHO, World Health Organization (1997) Nitrogen Oxides (Second Edition) Environmental Health Criteria 188.
- [12] WHO, World Health Organization (2000) Air Quality Guidelines for Europe, Second Edition. Nitrogen dioxide, p.175-180.
- [13] WHO, World Health Organization (2006) Air quality guidelines global update 2005: particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide. WHO Regional Office for Europe, Copenhagen, Denmark.
- [14] Wichmann HE (2018) Expertise „Gesundheitliche Risiken durch Stickstoffdioxid“ zur Vorlage bei der Interministeriellen Arbeitsgruppe „Luftreinhaltung“ der Landesregierung Baden-Württemberg.

NO_x vs. CO₂ - Is the comparison between local pollutant and global greenhouse gas emissions possible?

Friedrich Dinkelacker, F. Galli

Zusammenfassung

Die Reduktion von Schadstoffen wie Stickoxiden oder Rußpartikeln ist gegenwärtig ein wichtiger Treiber zur Entwicklung besserer Antriebskonzepte. In den nächsten Jahren werden zusätzlich strenge CO₂-Emissionsgrenzwerte in Kraft treten. Insofern ist es eine wichtige Frage, wie die Auswirkung von lokalen und kurzfristig wirkenden Schadstoffen mit global und langfristig wirkenden Treibhausgasen wie CO₂ verglichen werden kann. Was ist schädlicher? Kann ein Faktor bestimmt werden, um den ökologischen Fingerprint von beidem zu bestimmen? In unserer Arbeit wird ein Ansatz vorgeschlagen, der die schädliche Auswirkung auf Basis einer monetären Bewertung der Folgekosten (externalisierte Kosten) abschätzt. Sowohl für lokale Schadstoffe gibt es entsprechende Studien als auch für die global wirkenden Treibhausgas-Auswirkungen. Wir schlagen in unserem Modell vor, diese unterschiedlichen Emissionsklassen gemeinsam zu analysieren. Auch wenn die Bewertungsgrundlage sehr große Unsicherheiten aufweist, können interessante Folgerungen gezogen werden, was beispielhaft für die Bewertung der Real-Drive-Emissionen einiger unterschiedlicher Pkw-Fahrzeuge durchgeführt und diskutiert wird. Es wird abgeschätzt, dass die resultierenden externen Kosten im Bereich von 1 ct/km liegen (bei dreckigen Dieselfahrzeugen bei 2-3 ct/km), wobei gerade bei neueren Fahrzeugen der CO₂-Anteil gegenüber den lokalen Emissionsfolgen dominiert.

1 Introduction

The reduction of direct pollutants like nitrogen oxides (NO_x) [1] or particulate matter (PM) [2] is an important driver for the development of enhanced power train concepts for cars and trucks. The limits for direct emissions as well as the methods to measure them are currently being strongly discussed. Less discussed are the stricter regulations concerning the emission of CO₂, which will reduce the EU-wide limit on CO₂ emission by passenger cars from 130 to 95 grams of CO₂/km by 2021 [3]. For the greenhouse effect the damage is expected to act on a long-term time scale of the order of hundred and more years, impacting the earth globally [4]. As some of the current activities to reduce NO_x and particulates can lead to increased fuel consumption and therefore increased CO₂ emission, it is evident, that a joint evaluation of the ecological fingerprint of the local pollutant emissions and of the global greenhouse gases is needed. With such a comparative measure it would be possible to judge the overall impact on humans and nature, if for instance a method would decrease one type of emission but increase another type.



In other words: how to compare the impact of pollutants, which act locally and short-term, with the impact of global greenhouse gases like CO₂ and methane, acting on a long-term base. Is it possible to develop a comparative factor to rate the ecological fingerprint of both? Can it be that a well-intentioned action (e.g. replacement of diesel engines in cars with gasoline engines) reduces for instance local emissions, but would have a worse ecological impact because of increased CO₂ emissions? Or the other way around?

Nearly nothing is known in the literature about a comparative analysis of the ecological impact between local pollutant emissions and global greenhouse gas emissions. Indeed, the comparison is difficult to perform, as the effects are so different and the impact on nature will be on totally different time scales.

Our approach is, to perform this comparison on a monetary basis, in order to calculate the "follow-up costs". This approach has been chosen because both types of emissions, local pollutants and global greenhouse gases, damage environment and mankind, which in turn can be valued with monetary units.

Local pollutants can cause diseases and even death. Small particulates below 3 µm can reach the lower part of the respiratory system and can lead to cardiovascular diseases and cancer [2]. Sulphur oxide, carbon oxide and volatile organic compounds do influence the health directly. Nitrogen oxides can lead, especially in hot surroundings and in conjunction with volatile organic compounds, to an increase of the ozone concentration which can lead to significant negative health effects [5].

An increased concentration of global greenhouse gases in the atmosphere causes a long-term transformation of the environmental conditions which in turn can significantly affect human health and living conditions. The Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) predicts the increase of the average temperature on earth, the significant increase of the sea level, the transformation of large scale climate regions, the increase of extreme storms, decreased availability of water in many regions of the earth, reduced growth of food, increased health problems, and strong pressure for migration movements potentially resulting in violent conflicts [4].

2 Modelling approach based on external costs

As to our knowledge, no modelling approach has so far been applied to compare both types of impact. However, for both classes of emissions calculations of the impact have been reported with estimated "follow-up costs". Concerning local pollutant emission, several studies are known, where these follow-up costs, which in economics are called "external costs", are estimated (e.g. [6][7]). They include illness, death, reduced agricultural harvest and ecological risks. Concerning the impact of greenhouse gas emissions, the external follow-up costs are also referred to as "social cost of carbon" (SCC). They include the impact on human health, living environment, agricultural productivity, infrastructure, damage due to increased probability of thunderstorms, floods and natural catastrophes, and the possible extinction of threatened species.

It is apparent that some of these points are very difficult to estimate. However, it is of great importance as the effects could be devastating for humanity. The impact of

greenhouse gas emissions (not only CO₂ but also methane, and other gases) is relevant on a much longer time scale affecting the climate still after centuries or even millennia [4]. The scale of negative impact however differs from country to country. Both aspects, the long timescales as well as the varying impact on different regions, are controversial aspects of a quantitative evaluation of such external costs. We will try to regard these problems with a consideration of the large uncertainties.

In the following the external costs of both classes of emissions, short-term pollutants and long-term greenhouse gases, are estimated based on available data from the literature.

2.1 External costs of local pollutants

To estimate the external costs of pollutants, the *Impact Pathway Approach* (IPA) [5][6] is followed, containing five steps:

- 1 Quantification of the pollutant emission.
- 2 Distribution of the pollutant (typically up to 30 km from the emission source), including transportation, mixing with air and intermediate reaction.
- 3 Assessment of the human and environmental exposure with the pollutant in dependence on place of emission and population density.
- 4 Analysis of the impact, like illness, death, reduced agricultural harvest and ecological risks with the help of *exposure-response functions*.
- 5 Monetary evaluation of the impact. This is done based on the method to determine the "*willingness to pay*" for increased cleanliness or the "*willingness to accept*" as the financial compensation to accept a certain unfriendly environmental situation [6].

Especially step 4 has high uncertainties for instance, as being partly the result of laboratory experiments with much higher dose rates than occur in the real world, where the extrapolation to low dose rates may or may not be correct. Step 5 shows that the evaluation of the monetary impact depends strongly on the general living costs of a society. It varies strongly in different countries. Relevant studies have made detailed estimations of the external costs of pollutants for different countries in Europe [6][7][8][9]. The different studies result in a bandwidth of the external costs per ton of emissions of NO_x, SO₂ and NMVOC (non-methane volatile organic compounds) and soot particles (PM_{2.5}). For instance, for Germany the external costs per emitted ton are estimated to be:

NO_x with 10,000 – 20,000 €/t (15,900 / 18,400 €/t)
SO₂ with 11,000 – 19,000 €/t (14,900 / 17,400 €/t)
NMVOC with 1,200 – 1,900 €/t (1,300 / 1,400 €/t)
PM_{2.5} with 47,000 – 87,000 €/t (54,100 / 64,100 €/t) (for rural regions)

We use the values given in brackets for 2010 / 2020, taken from [10]. Especially in larger cities, the impact of soot particles is much higher than in rural regions, as the impact depends strongly on the population density and the filtering effect from green plants. This results in much higher estimated external costs for PM_{2.5} for large urban cities in the range of 220,000 [6] to 470,000 €/t [7]. We use for the years 2010 and

2020 191,000 / 221,000 €/t for cities (50,000 – 500,000 inhabitants) and 592,000 / 684,000 €/t for large cities (more than 500,000 inhabitants).

Also for other countries in Europe, such data have been determined by these studies, with strong variations, which are coming either from different population densities or from the very different monetary evaluation (step 5). For simplicity, this will not be discussed in this publication.

In these studies, the uncertainties can be estimated only roughly. Some authors describe the uncertainty with a geometric standard deviation of around 3, which means that with some certainty (68%) the true costs will be within the interval $[x_m/3, x_m \cdot 3]$ around the geometric mean value x_m .

2.2 External costs of global greenhouse gases

The external costs of global greenhouse gases have been investigated by various research groups. As basis for the model, the data from a US-Governmental Interagency Working Group has been chosen [11]. It combined the calculations of three computer-based models [12][13][14]. The calculation of the external costs of greenhouse gases includes amongst others human morbidity and mortality, impacts of the rising sea level, agricultural impacts, impacts of extreme weather conditions and the extinction of species [15]. Assumptions were made by the working groups regarding possible scenarios of economic and emission growth as well as the climate system's response to increased greenhouse gas concentrations in the atmosphere. Since many parameters are determined by probability distributions because uncertainty is very high, the results were statistically analysed for multiple runs. From the three models, each with five socioeconomic scenarios, a probability distribution of the sensitivity of the climate and three discount rates results in a broad statistical estimation of the follow-up costs of greenhouse gases [11].

These costs depend strongly on the discount rate, as the greenhouse gases have a long-term effect on the climate. Discounting is the process of determining the present value of a payment in comparison with the value in the future. It is estimated as the amount of money B to be invested today with a certain discount rate D to reach a value of money B_n in n years:

$$B = B_n \cdot \frac{1}{(1+D)^n} \quad (1)$$

Based on the discounting approach a comparison between the costs today and in several years can be made. The results of the mentioned scenarios are shown as the probability distribution of the real follow-up costs of CO₂. This means that for instance with a discount rate of 3 % the external costs of CO₂ will be most likely somewhere between zero and 123 \$/t, depending on which of the assumptions in the calculations will be valid (Fig. 1).

As can be seen the uncertainty of all the different mechanisms of the long-term impact of greenhouse gases is very large. This has to be held in mind for the subsequent discussions. In our model we follow the recommendation of the working group [11] and

assume a discount rate of 3 %. Further, we assume that the median value of this distribution will be a realistic approximation of the external costs of CO₂ which is 42 US\$/ton CO₂. We convert this value for simplicity in the following to 42 €/t CO₂, being based on the average exchange rate in the year of the publication of the source data.

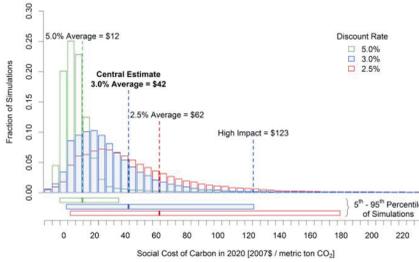


Figure 1 - Bandwidth of the possible follow-up costs of CO₂ emission being based on several scenario simulations of the emission in the year 2020 as a function of the discount rate. The figure is taken from [11].

2.3 Model approach for combined estimation of external costs

With this monetary estimation of external costs, we assume that the combined costs of both the local pollutant emission impact and the global greenhouse gas impact can be calculated [16]. Our model combines the external costs occurring by the emission of the most important local pollutants: NO_x, SO₂, NMVOC, PM_{2,5} and global greenhouse gases: CO₂, and CH₄. The total external costs EC_{total,a} are calculated as the sum of the external costs caused by both classes:

$$EC_{total,a} = EC_{NO_x,a} + EC_{SO_2,a} + EC_{NMVOC,a} + EC_{PM_{2,5},a} + EC_{CO_2,a} + EC_{CH_4,a} \quad (2)$$

The external costs (EC_{i,a}) are measured in €₂₀₁₅, the value of Euros in the year 2015. The parameter *i* stands for a pollutant or greenhouse gas, *a* for the year in which the gas is emitted. The external costs caused by each of these gases *i* themselves is calculated by multiplying the external costs per ton of emitted gas, ec_{i,a} [$\frac{€_{2015}}{t}$], with the emitted amount, x_i, measured in tons:

$$EC_{i,a} = ec_{i,a} * x_i \quad (3)$$

Because the damage caused by particulate matter is highly dependent on location of emission, the model differentiates between the emission in rural areas, cities and large cities. As described before the external costs of pollutants are dependent on the year and country of emission. Because the external costs are approximated to increase in a linear fashion over time, the external costs per ton pollutant are being calculated by a country specific linear function through two predetermined points for the years 2010 and 2020 (ec_{i,2020} and ec_{i,2010}):

$$ec_{i,a} = ec_{i,2010} + (ec_{i,2020} - ec_{i,2010}) * \frac{a-2010}{10} \quad (4)$$

ec_{i,2010} and ec_{i,2020} has been compiled in a table for most European countries [16]. In the following the values for Germany are discussed.

Greenhouse gases act globally. Here the dependency on the year of emissions calculated with

$$ec_{CO_2,a} = (-1866,69 + a * 0,944814) \quad (5)$$

For CH_4 we multiply this value with its global warming potential value of 28. When examining the damages caused by vehicles, it is reasonable to estimate the average external costs caused per distance travelled.

3 Comparison between local and global emission impact

Based on the assumption that the impact cost can be calculated with the above described external costs, both for local, short-term pollutants as well as for global, long-term greenhouse gas, a first approximation is of interest. This is the ratio between the impact costs of NO_x - as the currently most discussed local pollutant - to those of CO_2 - as the representative of greenhouse gas emission.

If the external costs are taken according to the numbers above (calculated in this example for the year 2020 with 18,400 €/t NO_x as German average, and 42 €/t CO_2), then the ratio between the impact costs of NO_x emission and CO_2 emission is calculated to have a value of 440. That means that one ton of emitted NO_x has about 440 times the impact of one ton of emitted CO_2 .

4 Estimation of external costs for some cars

In the following an estimation of the external follow-up costs of the various categories will be made for some selected passenger cars [16]. The estimation is based on a combination of measured and modelled emissions of different sets of cars. In detail the data are based on the TREMOVE model [19] combined with some measured real drive emissions described in recent studies [17][18]. A baseline scenario, a lower ("low emissions") and an upper ("high emissions") scenario, as well as five scenarios for different fuels have been created [16] (Fig. 2).

Scenario	NM VOC [mg/km]	NO _x [mg/km]	SO ₂ [mg/km]	PM _{2,5} [mg/km]	CO ₂ [g/km]	CH ₄ [mg/km]
„Baseline“	40	170	1,3	2	200	8
„Low emissions“	25	60	1	0,1	130	0,2
„High emissions“	110	1500	2	20	300	20
„Petrol“	65	70	1,4	1	215	15
„Diesel 1“	27	250	1,2	1	190	1
„Diesel 2“	27	750	1,2	8	190	1
„LPG“	107	60	0	0	170	95
„Natural gas “	2	13	1	0,2	150	30

Figure 2 - Eight scenarios for the emissions of cars [16]. The data can be seen as representative for average real drive emissions in the years 2014 - 2016, being based on data from [17][18][19]. For diesel fuelled cars two scenarios have been defined, one with lower and one with higher real drive emissions.

Assuming these emission values, the external costs for the fuel emission are calculated according to the model and costs discussed in section 2 for the emissions for German conditions in 2020, while the costs of the greenhouse gas impact are based on the median value of all scenarios for 2020 (42 €/t).

For each gas the range of impact cost per km is shown in Figure 3 with the dots for the baseline scenario and the indicated range for the low emissions and the high emissions scenarios [16].

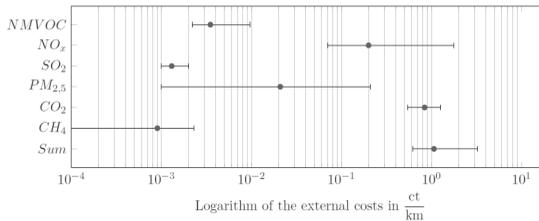


Figure 3 - Estimation of external costs in Euro-Cents per km for the baseline scenario (dots) and for the range between low and high emission scenario for the different local pollutants as well as for the greenhouse gases CO₂ and methane. Assumptions: Calculation for Germany in 2020, average region mix.

According to these assumptions the most important contributions to the external costs are coming from the impact of the greenhouse gas CO₂ and from the local emission of nitrous oxides. The particulates contribute in the high emissions scenario (and also for large city situations, not shown here). All other gases have minor influence. It may be noted, that the environmental impact is about the same coming from the global greenhouse gas emission and from the local emissions, where especially the NO_x contributes. In larger cities or for rather "dirty" cars also the particulate emission contributes here. The average external cost is estimated in the range of 0.6 to 3.0 ct/km [16].

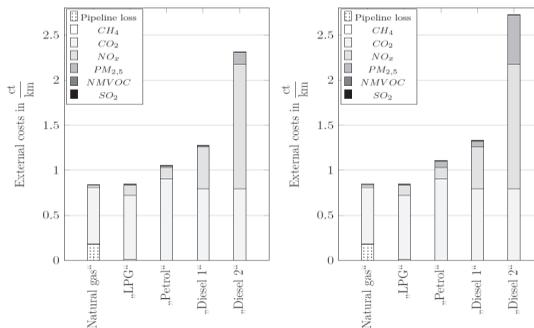


Figure 4: Estimated external costs for different car types based on real drive emissions. Left side average for all-Germany, right side for a large city in Germany. Assumptions: Costs of local emission impact as discussed before, costs of greenhouse gas impact based on the median value of all scenarios for 2020 (42 €/t CO₂).

A more detailed comparison of the emission impact for different fuelled cars, according to the measured real emission data (as listed in Figure 2) is plotted in Figure 4. The left side shows average costs for Germany (rural, cities and large cities being weighted according to the TREMOVE scenario [19]), while the right side gives external costs for a large city in Germany (both for a 2020 situation).

Several interesting results can be seen, although it has to be clear that the calculations are based on several uncertain assumptions.

- Firstly, the CO₂ contribution to the external costs is dominant for all "cleaner" cars, while the local emissions are less influencing the external costs.
- Secondly, for diesel cars the NO_x emission is very relevant. This holds true especially for the "dirty" diesel 2 case with rather high real drive emissions. For the other cars the NO_x emission influence is rather low.
- Thirdly, the particulate matter emission is only significant for cities and large cities for the "dirty" diesel 2 case. In the rural regions the calculated impact of particulate matter is very low, due to the lower population density and the mixing with air or the filtering effect of green plants. It may be noted, that this holds true also for countries with less population density or for locations near the sea [16].
- Fourthly, petrol driven cars have lower impact cost than diesel driven cars (about 80 percent compared to the clean diesel). However, the difference is smaller than is probably expected from the current discussion, as the CO₂ emission is larger.
- Fifthly, comparing petrol driven cars with gas fuelled ones, the latter lead to a reduction of the environmental impact of about 80 percent for the liquid petrol gas ("LPG") due to partly reduced CO₂ emissions. About the same impact value is estimated for the car with compressed natural gas. Here, a significant contribution to the greenhouse gas emission is assumed to come from the extraction and distribution losses of natural gas with the large global warming potential of methane. No reliable data on this contribution is known so far. If these methane leakages would be omitted, the natural gas fuelled engines show the lowest overall impact on the environment.

5 Discussion

In this study a comparison between the impact of short-term, local pollutants and long-term, global greenhouse gases (especially CO₂ and methane) has been conducted. In order to compare the various nearly incommensurable effects, a method to calculate the combined monetary impact (external costs) is developed. While this method has been applied in the past either for the local emission impact of combustion pollutants or for that of the global long-term emission of greenhouse gases, we combine both approaches, which, to our knowledge, has not been done before.

As the monetary evaluation of the costs contains several uncertainties, both for the local emission impact as well and especially for the long-term predictions of the global greenhouse gas impact, the conclusions have to be seen with care.

Regarding these uncertainties, some preliminary results are taken here for an assumed emission in the year 2020, for average German conditions:

1. The impact of the most relevant local pollutant, NO_x, relative to that of CO₂ as the most relevant global greenhouse gas contributor, is approximately 440 times greater, based per ton of emitted gas. This could be a guide, if for instance a new technology reduces the greenhouse gases significantly but increases the local pollutant emissions to some extent. It seems to be rational to minimize the ecological overall impact, instead to follow singular emission limits.

2. The impact of some selected cars based on measured real drive emissions has been compared in the form of a calculation of the produced external costs per km. For the "cleaner" ones of them, the impact is mostly coming from global CO₂ emission. The impact of local pollutant emissions is lower here. Relatively seen, the NO_x emission has the highest impact of the local emissions, while other pollutants are less important. For older "dirty" diesel driven cars the emission of NO_x and of soot particles is dominant. This has to be considered especially in urban cities where the impact of particulates is much stronger than in rural regions.

3. The impact costs of cars, based on measured real drive emissions, have been estimated in the order of 0.6 ct/km to 1.3 ct/km for cars being driven by - in this order - natural gas, LPG, gasoline, diesel (cleaner version). For the dirty diesel the calculated impact cost reaches 3 ct/km (for German conditions in large cities). For cars in accordance with the future emission legislation the impact cost will be mostly dominated by the CO₂ contribution.

4. Integrating the contributions of the external impact costs of cars over their lifetime (200,000 km for petrol or gas engine cars, 300,000 km for diesel cars) the integrated impact costs are calculated to be about 2000 Euro for a petrol car (with impact costs of 1 ct/km), and 4000 to 9000 Euro for diesel engine cars (the latter value for a "dirty" version). These numbers might be indicators, how much additional money would be reasonable to invest in order to reduce the emission of cars from a global economic point of view.

Acknowledgement

We thank Mrs. D. Schmid from the Institut für Energiewirtschaft und rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart, very much for the latest version of her dataset on external costs.

Literature

- [1] Clean Air Technology Center, *Nitrogen Oxides (NO_x), Why and How They Are Controlled*, Technical Report US EPA, 1999.
- [2] World Health Organization, *Health effects of particulate matter - Policy implications for countries in eastern Europe, Caucasus and central Asia* Technical Report, WHO, Copenhagen Denmark, ISBN 978-92-890-0001-7, 2013.
- [3] European Commission, *Verordn. EG Nr 4432009: Festsetzung von Emissionsnormen für neue Personenkraftwagen im Rahmen des Gesamtkonzepts der Gemeinschaft zur Verringerung der CO₂-Emissionen von Personenkraftwagen und leichten Nutzfahrzeugen*, 2009.

- [4] Intergovernmental Panel on Climate Change, *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press, ISBN 9781107057991, 2013.
- [5] Bickel, P. Friedrich, R., *Environmental External Costs of Transport*, 1. Auflage, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 2001.
- [6] Korzenevych, A., Dehnen, N., Bröcker, J., Holtkamp, M., Meier, H., Gibson, G., Varma, A., Cox, V., *Update of the Handbook on External Costs of Transport*, Report for EU: ED 57769, RICARDO-AEA, London, 2014.
- [7] Bickel, P., Friedrich, R., Burgess, A., Fagiani, P., Hunt, A., Jong, G.D., Lieb, C., Laird, J., Lindberg, G., Mackie, P., Navrud, S., Odgaard, T., Ricci, A., Shires, J., Tavasszy, L., *HEATCO Developing Harmonised European Approaches for Transport Costing and Project Assessment - Deliverable 5 Proposal for Harmonised Guidelines*, Report for EU Project HEATCO, IER, Stuttgart, 2006.
- [8] Essen, H. van, Schroten, A., Otten, M., Sutter, D., Schreyer, C., Zandonella, R., Maibach, M., Doll, C., *External Costs of Transport in Europe - Update Study for 2008*, Technical Report, CE Delft, Infrac, Fraunhofer ISI, 2011.
- [9] Holland, M., Wagner, A., Spadaro, J., Davies, T., *Revealing the costs of air pollution from industrial facilities in Europe*, European Environmental Agency, Copenhagen, Denmark, ISBN 978-92-9213-236-1, 2011.
- [10] Schmid, D., *Dataset for External Costs of Pollutants in Europe*, Institut für Energiewirtschaft und rationelle Energieanwendung, Univ. Stuttgart, priv. communic 2017.
- [11] Interagency Working Group on Social Cost of Greenhouse Gases, *Technical Support Document: Technical Update of the Social Cost of Carbon for Regulatory Impact Analysis Under Executive Order 12866*, U.S. Government, 2016.
- [12] Nordhaus, W., Satorc, P., *DICE 2013R: Introduction and User's Manual*, 2013.
- [13] Anthoff, D., Tol, R.S.J., *The Climate Framework for Uncertainty, Negotiation and Distribution (FUND)*, Technical description, version 3.8, 2014.
- [14] Hope, C., *Critical issues for the calculation of the social cost of CO₂: why the estimates from PAGE09 are higher than those from PAGE2002*, Clim. Change 117(3):531–543, 2013.
- [15] Smith, S., Braathen, N.A., *Monetary Carbon Values in Policy Appraisal: An Overview of Current Practice and Key Issues - Environment Working Paper No. 92*, OECD, 2015.
- [16] Galli, F., *Modellentwicklung zur vergleichenden Quantifizierung externer Kosten des Schadstoff- und Treibhausgasausstoßes von Kraftfahrzeugen*, Masterthesis, ITV Univ. Hannover, 2017.
- [17] Franco, V., Sanchez, F.P., German, J., Mock, P., *Real-World Exhaust Emissions from Modern Diesel Cars*, Technical Report, International Council on Clean Transportation, Berlin, 2014.
- [18] Ligterink, N.E., *Emissions of three common GDI vehicles*, Report TNO 2016 R11247, Netherlands Organisation for Applied Scientific Research, 2016.
- [19] *TREMOVE - Emissions*, Computer program v. 3.3.2., TM Leuven, 2010. <http://www.tmluven.be/methode/tremove/home.htm> (12.12.2016)



Perspektiven für flüssige Energieträger und Rohstoffe aus Sicht der Mineralölindustrie

Christian Küchen

Abstract

Liquid energy sources and raw materials have a major significance today. They can be easily stored and transported, their chemical properties making them very versatile, thus forming the basis for important industrial value-added chains in Germany. Approximately 98% of the final energy used and 22% of the heating energy currently originate from liquid energy sources. 16% of the mineral oil is used in chemical industry, thus covering 75% of its organic raw material needs.

Important economic sectors and consumers will continue to need liquid energy sources in the future. Particularly in parts of the transport sector (e.g. aviation, shipping, long-distance road freight transport) and in the chemical industry, liquid energy sources and raw materials cannot, or only with difficulty, be replaced. In other areas, currently largely supplied with liquid energy sources, such as car transport and the heating sector, a competition between Low Carbon Liquids and others, such as electricity-based systems, will arise.

In the future renewable electricity or biomass can be used to gain GHG-neutral liquid energy carriers. Because liquid energy sources remain needed, the development of a power-to-liquid technology path under climate protection aspects is a no-regret measure and therefore highly recommended.

1 Nutzung von Mineralölprodukten in Deutschland

Mineralölprodukte sind gut speicher- und transportierbar. Ihre hohe Energiedichte und ihre chemischen Eigenschaften machen sie sehr vielseitig einsetzbar. So wird heute in Deutschland ca. 98 % des Endenergiebedarfs im Verkehrssektor durch flüssige Energieträger gedeckt. Im Wärmemarkt beträgt der Anteil des Heizöls an der eingesetzten Heizenergie 22 %. Und Mineralölprodukte decken ca. 75 % des organischen Rohstoffbedarfs der chemischen Industrie. Mineralölprodukte stehen damit auch am Anfang wichtiger industrieller Wertschöpfungsketten.

61 % der in Deutschland verwendeten Mineralölprodukte werden in im Verkehrssektor genutzt. 17 % gehen in die Wärmeerzeugung zur Beheizung von Gebäuden und als Prozesswärme in die Industrie. Und 22 % der Mineralölprodukte werden nicht energetisch, sondern stofflich genutzt, der größte Teil als Chemierohstoff, aber auch Schmierstoffe und Bitumen sind heute unentbehrlich.

Im Luftverkehr und in der internationalen Seeschifffahrt sowie in Teilen des Langstreckenschwerlastverkehrs auf der Straße wird man auch langfristig auf Kohlenwasserstoffe wegen ihrer hohen Energiedichte angewiesen sein. Zählt man die nicht energetische Nutzung hinzu, so ist ca. 40 % des heutigen Bedarfs an Kohlenwasserstoffen auch langfristig nicht z. B. durch direkte Elektrifizierung zu ersetzen.

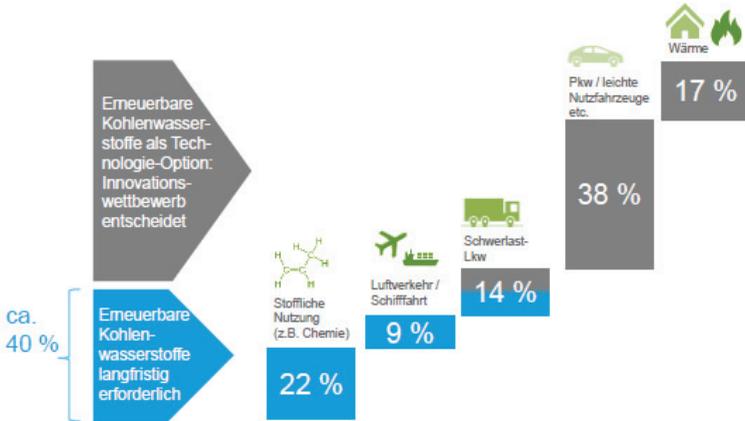


Bild 1: Nutzung von Mineralölprodukten in Deutschland 2016 [1]

In anderen Bereichen, wie z. B. dem Wärmesektor und beim Pkw-Verkehr, wird sich ein Wettbewerb zwischen THG-neutralen Energieträgern und Systemen mit direkter Stromnutzung einstellen.

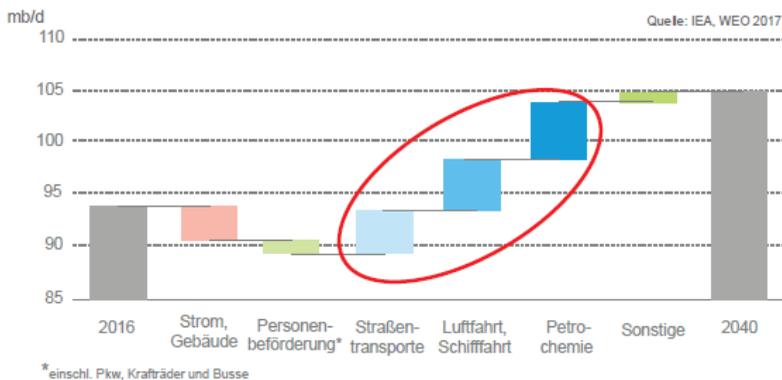


Bild 2: Veränderung der weltweiten Ölnachfrage bis 2040 [2]

Interessant ist, dass gerade die Anwendungen, in denen Kohlenwasserstoffe nicht oder nur schwer zu ersetzen sein werden, nach Einschätzung der Internationalen Energieagentur hauptverantwortlich für die bis 2040 weltweit steigende Nachfrage nach Kohlenwasserstoffen sein werden [2]. Während die Ölnachfrage in den Bereichen Stromerzeugung, Gebäude und Straßenpersonenverkehr ihren Höhepunkt bald überschritten hat, wird dies durch das Wachstum in den übrigen Sektoren Straßengüterverkehr, See- und Luftschifffahrt sowie chemische Industrie mehr als ausgeglichen. Da flüssige Energieträger demnach langfristig in großen Mengen benötigt werden, ist die Entwicklung und Markteinführung von treibhausgasreduzierten und perspektivisch treibhausgasneutralen Kohlenwasserstoffen unter Klimaschutzgesichtspunkten eine No-Regret-Maßnahme.

2 Energie- und klimapolitische Ziele

Nicht erst seit der Klimakonferenz von Paris steht der Klimaschutz auf der internationalen Agenda. Die deutsche Bundesregierung hat bereits in ihrem 2010 vorgelegten Energiekonzept die Zielsetzung von 80 bis 95 % Treibhausgasemissionsenkung im Vergleich zu 1990 festgelegt. Im November 2016 hat die Bundesregierung den Klimaschutzplan 2050 verabschiedet. Er enthält Zwischenziele für die einzelnen Verbrauchssektoren für das Jahr 2030 [3].

Besonders relevant für die Mineralölwirtschaft ist der Verkehrssektor. Das Umweltbundesamt hat für das Jahr 2017 Emissionen des Verkehrs von 170,6 Mio. t ermittelt [4]. Die Emissionen sind wegen des stark gestiegenen Verkehrsaufkommens absolut im Vergleich zu 163 Mio. t im Jahr 1990 leicht angestiegen. Das sektorspezifische Emissionsziel von 95 – 98 Mio. t für 2030 bedeutet somit eine Reduktion um 42,5 – 44,3 % innerhalb von 12 Jahren. Unterstellt man eine weitere Steigerung der Verkehrsnachfrage vor allem im Güterverkehr, bedeutet das Sektorziel für den Verkehrsbereich fast eine Halbierung der spezifischen THG-Emissionen pro Tonnen- bzw. Personenkilometer innerhalb der nächsten Dekade. Auch dadurch wird deutlich, dass eine Elektrifizierung des Pkw-Sektors allein nicht ausreichen wird, vielmehr müssen auch flüssige und gasförmige Energieträger schrittweise defossilisiert werden, um die Ziele zu erreichen.

Tabelle 1: Sektorziele 2030 des Klimaschutzplans 2050 der Bundesregierung [3]

Handlungsfeld	1990 (in Mio. t CO ₂ -Äq.)	2014 (in Mio. t CO ₂ -Äq.)	2030 (in Mio. t CO ₂ -Äq.)	2030 (Minderung in % ggü. 1990)
Energiewirtschaft	466	358	175 – 183	62 – 61 %
Gebäude	209	119	70 – 72	67 – 66 %
Verkehr	163	160	95 – 98	42 – 40 %
Industrie	283	181	140 – 143	51 – 49 %
Landwirtschaft	88	72	58 – 61	34 – 31 %

Nach heutiger Einschätzung des Autors sind die extrem ambitionierten Ziele bis 2030 dennoch voraussichtlich nicht zu erreichen.

3 Studien

Zahlreiche Studien liefern Grundlagen für die politischen Diskussionen und zeigen auf, mit welchen technischen Möglichkeiten die ambitionierten Klimaziele erreicht werden könnten.

So haben im November 2017 haben Ludwig-Bölkow-Systemtechnik (LBST) und die Deutsche Energie-Agentur (dena) im Auftrag des Verbands der Automobilindustrie (VDA) eine Studie zum Potenzial strombasierter Kraftstoffe (e-fuels) zur Reduzierung der THG-Emissionen des Verkehrssektors vorgelegt [5]. Nach dieser Studie sind e-fuels aus erneuerbaren Quellen notwendig, um die EU-Klimaschutzziele im Verkehrssektor zu erreichen. Der Endenergiebedarf aller Verkehrsträger der EU im Jahr 2050 wird selbst in einem stark batterieelektrifizierten Verkehrsszenario zu mehr als 70 % von e-fuels gedeckt werden. Die derzeit noch hohen Kosten für e-fuels werden sinken, das ist eine weitere Kernaussage der Studie.

Im Januar wurde die im Auftrag des Bundesverbands der deutschen Industrie (BDI) von Boston Consulting (BCG) und Prognos erarbeitete Studie „Klimapfade für Deutschland“ vorgelegt [6]. Ziel der Studie ist es, volkswirtschaftlich kosteneffiziente Wege zur Erreichung der deutschen Emissionsminderungsziele aufzuzeigen. Es wurde zum Vergleich und zum Aufzeigen der Umsetzungslücke ein Referenzpfad modelliert, bei dem die bisherigen Maßnahmen zur THG-Reduzierung fortgeschrieben werden. Dies betrifft sowohl politische wie regulatorische Rahmenbedingungen als auch absehbare Technologieentwicklungen. Auf diesem Referenzpfad werden ca. 61 % Emissionsminderung gegenüber 1990 erreicht. Es bliebe demnach eine Lücke von 19 bzw. 34 Prozentpunkten zu den deutschen Klimazielen.

Nach den Ergebnissen der Studie wäre volkswirtschaftlich eine Reduzierung der THG-Emissionen um 80 % verkräftbar, für viele der erforderlichen Maßnahmen wäre aber aus Unternehmens- oder Verbrauchersicht keine Wirtschaftlichkeit gegeben. Die Studie kommt zum Ergebnis, dass vor allem erhebliche Effizienzsteigerungen und eine weitgehende Elektrifizierung des Wärme- und Verkehrssektors und auch im Industriebereich zusammen mit einem starken Ausbau der erneuerbaren Stromerzeugung in Deutschland zur Zielerreichung beitragen müssten. Erst bei über 80 % THG-Reduzierung werden Importe erneuerbarer Kraft- und Brennstoffe erforderlich.

Dagegen kommt die dena-Leitstudie „Integrierte Energiewende“ zum Ergebnis, dass mit einem Technologiemix die Ziele deutlich günstiger zu erreichen sind als mit einer weitgehenden Elektrifizierungsstrategie [7]. So werden schon bei 80 % Treibhausgasreduzierung erhebliche Mengen synthetischer Kraft- und Brennstoffe benötigt, wobei insbesondere flüssige Energieträger importiert werden. Bei einer Zielsetzung von 95 % Treibhausgasreduzierung ergibt sich im Technologiemix-Szenario der dena im Jahr 2050 ein Bedarf an erneuerbaren synthetischen gasförmigen und flüssigen Energieträgern von über 900 TWh/a.

Die dena empfiehlt daher, dass neben den bisherigen Schwerpunkten: Steigerung der Energieeffizienz und beschleunigtem Ausbau der erneuerbaren Stromerzeugung als dritte Säule eine Roadmap für synthetische Energieträger entworfen und umgesetzt werden muss. Insbesondere für den Verkehrssektor wird neben der Elektrifizierung die Notwendigkeit gesehen, auch auf synthetische Kraftstoffe zu setzen.

Die dena weist darüber hinaus darauf hin, dass synthetische Kraft- und Brennstoffe weitere Zukunftsperspektiven eröffnen. Sie sind eine Alternative und damit eine Chance für die Länder, die heute vor allem vom Export fossiler Rohstoffe leben und auch für die damit verbundenen Industriezweige. Sie bieten neue Perspektiven für heutige Entwicklungsländer, die gute Standortbedingungen für erneuerbaren Strom aufweisen. Und schließlich ergeben sich Chancen für Industriezweige auch in Deutschland, wenn für Technologien wie die Elektrolyse oder den Anlagenbau Exportmärkte geschaffen werden.

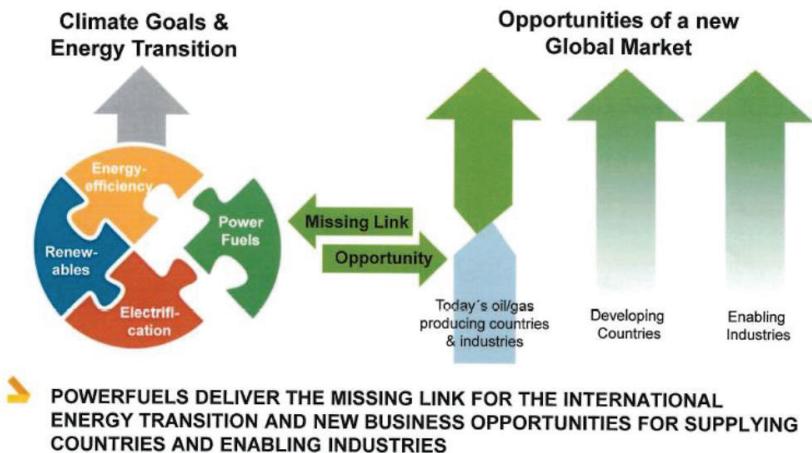


Bild 3: Why Powerfuels (Quelle und Grafik: dena)

Speziell mit dem Status und den Perspektiven flüssiger Energieträger in der Energiewende hat sich die Prognos AG in Zusammenarbeit mit dem Fraunhofer-Institut für Umwelt-, Sicherheits- und Energietechnik UMSICHT und dem Deutschen Biomasseforschungszentrum DBFZ beschäftigt [8]. Die im Juni 2018 veröffentlichte Studie wurde im Auftrag von Verbänden der Mineralölwirtschaft erstellt.

Für das Referenzszenario wurden die auch in der BDI-Studie „Klimapfade für Deutschland“ entwickelten Annahmen verwendet. Die Entwicklung von Szenarien, die zu 80 bzw. 95 % THG-Reduzierung führen, gehen von einer letztendlich begrenzten Möglichkeit des Ausbaus erneuerbarer Stromerzeugung in Deutschland aus, z. B durch Flächenrestriktionen und eine eingeschränkte Akzeptanz. Zum anderen wird unterstellt, dass sich die Effizienzsteigerung nur in der Größenordnung fortsetzt, wie sie in den letzten Jahren durchschnittlich festgestellt wurde. Darüber hinaus gehende signifikante Steigerungen der Energieeffizienz wurden nicht angesetzt.

Insofern kommt der Nutzung synthetischer erneuerbarer Gase und Flüssigkeiten (PtX) eine wesentliche Rolle beim Erreichen der Klimaziele zu. Die Herstellung der PtX-Energieträger erfolgt insbesondere im Ausland mit Strom aus erneuerbaren Energien. Die Szenarien dieser Studie beschreiben daher, wie die THG-Einsparziele mit Hilfe von treibhausgasneutralen PtX-Brenn- und Kraftstoffen erreicht werden können, unabhängig von Akzeptanzhürden.

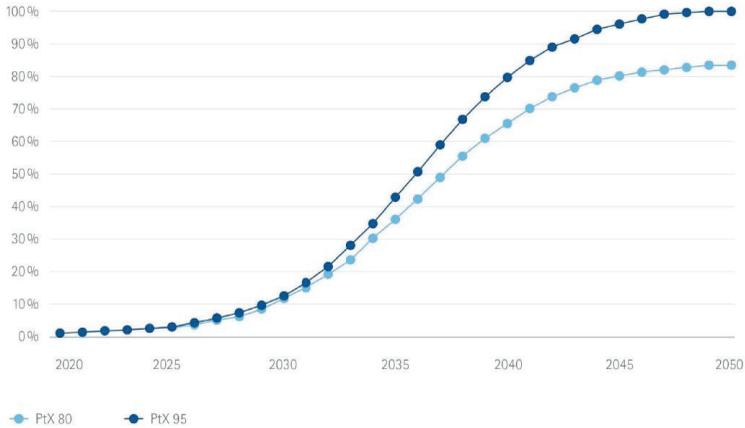


Bild 4: Beimischungsanteile für synthetische Energieträger in den Szenarien [8]

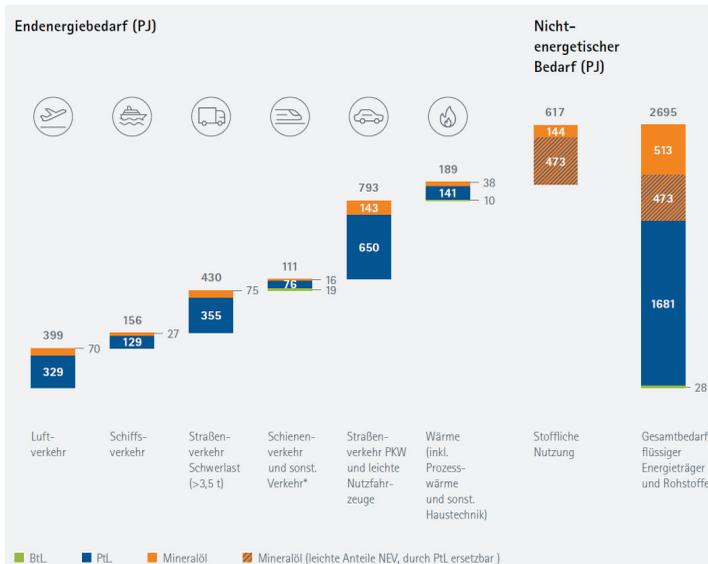


Bild 5: Einsatz flüssiger Energieträger in Deutschland im Jahr 2050 im Szenario PtX 80 [8]

Insgesamt könnte sich ein deutscher PtL-Bedarf von bis zu 2.000 PJ ergeben. Alleine für den von Deutschland ausgehenden Flug- und Schiffsverkehr zeigen die Szenarien einen Bedarf von rund 550 PJ.

Ein weiterer Schwerpunkt der Studie ist die Verbrauchersicht bei der Bewertung verschiedener Lösungen. Verbraucher legen bei ihren Investitionsentscheidungen vielfältige Kriterien an. In der Studie werden Stromlösungen wie E-Autos oder Strom-Wärmepumpen mit Fahrzeugen mit Verbrennungsmotoren oder Öl- und Gasheizungen jeweils mit zunehmenden PtX-Anteilen verglichen. Dabei werden als Kriterien Wirtschaftlichkeit, Nutzung aus Verbrauchersicht und Umweltaspekte zugrunde gelegt.

4 Perspektiven für die Mineralölwirtschaft

Der Verband der europäischen Mineralölindustrie, FuelsEurope, der mit 41 Mitgliedsunternehmen den gesamten EU-Raffineriesektor repräsentiert, hat vor dem Hintergrund der energie- und klimapolitischen Herausforderungen im April 2018 anlässlich der EU-Energieministerkonferenz in Sofia und danach in Brüssel auf dem 8. Refining-Forum mit der EU-Kommission die Branchenvision 2050 vorgestellt. Der Mineralölwirtschaftsverband war bei der Erarbeitung beteiligt.

Raffinerien und die in Raffinerien hergestellten Energieträger und Rohstoffe werden sich verändern müssen, wenn das ambitionierte EU-Ziel, bei der Bewältigung des Klimawandels weltweit führend zu sein, Realität werden soll. Die Mineralölindustrie in der EU wird wesentliche Beiträge zur Zielerreichung leisten, sowohl durch die Reduzierung von CO₂-Emissionen in Raffinerien als auch durch die Reduzierung der Treibhausgasemissionen der flüssigen Kraft- und Brennstoffe sowie anderer Produkte, die von Wirtschaft und Verbrauchern auch langfristig benötigt werden.

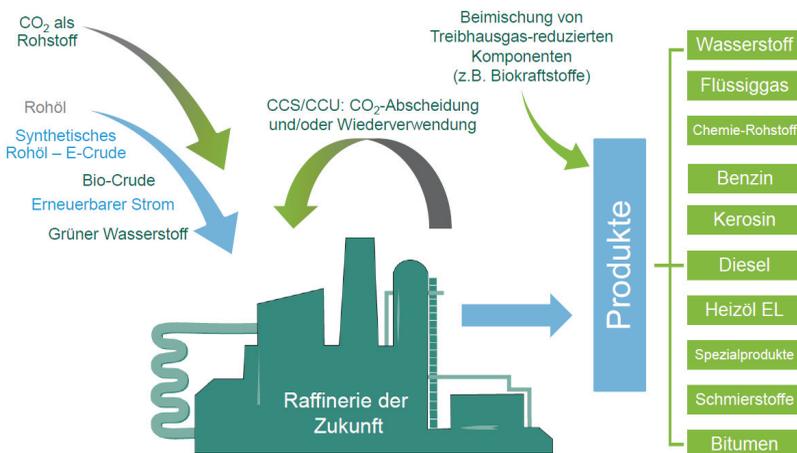


Bild 6: Raffinerie der Zukunft – Schrittweise zur THG-Neutralität

Dazu werden Raffinerien in der Zukunft zunehmend neue Rohstoffe wie erneuerbare Energien, wiederverwertete Rohstoffe und auch CO₂ in hocheffizienten Produktionsanlagen einsetzen. Eine wichtige Technologie ist der schrittweise Ersatz des durch Steam-Reforming von Erdgas erzeugten Wasserstoffs durch Elektrolysewasserstoff auf Basis erneuerbaren Stroms. In integrierten Wertschöpfungsketten können Raffinerien im Zusammenspiel mit anderen Industriezweigen wie z. B. der Chemie, anderer CO₂-emittierender Industriezweige und auch mit Stromversorgern Synergieeffekte erzielen. Diese Industriecluster sind gekennzeichnet durch die Produktion und den Austausch einer Vielzahl von Rohstoffen und Vorprodukten, wie z. B. von „grünem“ Wasserstoff, überschüssigem Kohlenstoff, nachhaltiger Biomasse, Sekundärbrennstoffen, Restwärme, konventionellem und synthetischem Rohöl sowie Ökostrom.

Diese Vision muss fester Bestandteil der EU-Industrie- und Technologiestrategie sowie deren Forschungs- und Entwicklungsprogramme werden. Für die Umsetzung der Vision ist ein konsistenter politischer Rahmen über mehr als 20 Jahre unbedingt erforderlich, der Investoren Stabilität und Vorhersehbarkeit garantiert und Technologieoffenheit gewährleistet.

5 Erforderliche Rahmenbedingungen

Flüssige und gasförmige Energieträger werden neben einer direkten Elektrifizierung und weitgehenden Effizienzsteigerungen in allen Anwendungen langfristig in großem Umfang benötigt. Neben fortschrittlichen Biokraftstoffen werden synthetisch hergestellte Energieträger eine wachsende Bedeutung bekommen.

Die PtL-Erzeugung in großtechnischem Maßstab benötigt Technologien, die zum Teil noch erhebliche Lernkurven durchlaufen müssen. Neben der Forschungsförderung ist daher die Unterstützung der Markteinführung besonders wichtig.

Die Wasserstoffherstellung durch Elektrolyse ist eine der Schlüsseltechnologien für synthetische Kraft- und Brennstoffe. Insofern ist es zu begrüßen, dass in den vorliegenden Entwürfen der Überarbeitung der Erneuerbaren-Energien-Richtlinie eine klare Perspektive für die Anerkennung der Nutzung von grünem Wasserstoff im Produktionsprozess von Kraftstoffen in Raffinerien vorgesehen ist. Damit können wichtige Skaleneffekte für diese Technologie erschlossen werden. Jetzt wird es darauf ankommen, die Richtlinie so in der nationalen Gesetzgebung umzusetzen, dass keine zusätzlichen Hürden entstehen.

Insgesamt setzt der Richtlinienentwurf dennoch im Mobilitätssektor stark auf eine direkte Elektrifizierung. Dies wird besonders dadurch deutlich, dass Strom für die E-Mobilität 4-fach angerechnet werden soll. Auch aus diesem Grund setzt die Richtlinie keine erkennbaren Signale zum Aufbau von Produktionskapazitäten für synthetische Kraftstoffe.

Da erneuerbare und nachhaltige flüssige und gasförmige Energieträger nach allen vorliegenden Studien auch langfristig erheblich teurer sein werden als fossiles Gas oder Öl heute, ist für Investoren besonders wichtig, dass diese höheren Kosten auch langfristig vom Verbraucher bzw. Kunden getragen werden. Insgesamt weist der Straßenverkehr heute die höchsten CO₂-Vermeidungskosten bzw. auch schon die

höchsten impliziten CO₂-Kosten auf. Dagegen ist z. B. im Luftverkehr oder in der Seeschifffahrt derzeit nicht zu erkennen, dass wegen des harten internationalen Wettbewerbs Treibstoffe mit signifikant höheren Kosten mittelfristig vermarktbar sein werden.

Im Straßenverkehr gelten bereits heute eine Vielzahl von Richtlinien, Verordnungen und steuerlichen Regelungen, die beispielsweise die E-Mobilität aus Verbrauchersicht direkt oder indirekt fördern. Eine beispielhafte Abschätzung ist in der nachstehenden Tabelle enthalten.

Tabelle 2: Direkte und indirekte Förderung vom E-Fahrzeug im Vergleich zum Fahrzeug mit Verbrennungsmotor

Kompaktfahrzeug: 15.000 km/a, 12 Jahre Nutzungsdauer (180.000 km)

1. E-Fahrzeug, Listenpreis 30.000 €, CO₂ = 0 g/km, Praxisverbrauch 15 kWh/100 km

	Kaufprämie	Förderung Infrastruktur ¹⁾	Dienstwagenbesteuerung ²⁾	Kfz-Steuer	Stromsteuer	Pkw-CO ₂ -Regulierung ³⁾	THG-Minderung ^{4) 5)}
Einmalig / jährlich	-2.000 €	-300 €	720 €	0 €	46,13 €	-9.025 €	-71,15
12 Jahre	-2.000 €	-300 €	2.880 €	0 €	553,50 €	-9.025 €	-853,80 €

2. Benzin-Motor, Listenpreis 25.000 €, Hubraum 1.200 cm³, CO₂ = 110 g/km, Praxisverbrauch 6 l/100 km

	Kaufprämie	Förderung Infrastruktur ¹⁾	Dienstwagenbesteuerung ²⁾	Kfz-Steuer	Energiesteuer	Pkw-CO ₂ -Regulierung ³⁾	THG-Minderung ^{4) 5)}
Einmalig / jährlich	0 €	0 €	1.200 €	54 €	589,05 €	1.425 €	23,55 €
12 Jahre	0 €	0 €	4.800 €	648 €	7.068,60 €	1.425 €	282,63 €
Δ 12 Jahre	2.000 €	300 €	1.920 €	648 €	6.515 €	10.450 €	1.136 €

¹⁾ Förderung Infrastruktur: 300 Mio. Euro bis 2020 für 1 Million Fahrzeuge bis 2020

²⁾ Dienstwagenbesteuerung (Planung lt. Koalitionsvertrag): 1 % ICE, 0,5 % BEV, 4 der 12 Fahrzeugjahre als Dienstwagen, Einkommensteuersatz (Grenzsteuersatz) = 40 %

³⁾ CO₂-Regulierung: Ziel in 2021 = 95 g CO₂ - Pönale 95 EUR pro g und Fahrzeug, theoretischer Maximalwert für Kfz-Hersteller

⁴⁾ nationale THG-Quote: 6 % Reduktionsverpflichtung ab 2020

⁵⁾ CO₂ Vermeidungskosten: 150 €/t (Argus Media, Pressemitteilung vom 15. Juni 2018)

Verglichen werden im Beispiel 2 Kompaktfahrzeuge, die 15.000 km pro Jahr genutzt werden, insgesamt über 12 Jahre. Die Gesamtfahrleistung beträgt demnach 180.000 km. Davon ein E-Fahrzeug zum Listenpreis von 30.000 Euro, die CO₂-Emissionen nach der Tank-to-Wheel-Methodik betragen 0 g/km, da die Emissionen der Stromerzeugung unberücksichtigt bleiben, der Praxisverbrauch wird im Beispiel mit 15 kWh/100 km angenommen. Das zweite Fahrzeug ist mit einem Benzin-Antrieb ausgestattet, der Listenpreis beträgt 25.000 €. Für die Berechnung der Kfz-Steuer wird der Hubraum von 1.200 cm³ und der CO₂-Emissionswert im Fahrzyklus von 110 g/km benötigt. Der Praxisverbrauch liegt bei 6 l/100 km.

Der Käufer eines Elektrofahrzeugs erhält heute als Kaufprämie vom Staat 2.000 €. Der genau so hohe Anteil des Fahrzeugherstellers wird nicht berücksichtigt, weil explizit die staatlich bedingten Kosten bzw. Vorteile aus Verbrauchersicht betrachtet werden. Im Vergleich zur staatlichen Kaufprämie fällt der staatlich geförderte Ausbau der Infrastruktur gering aus, wenn man die offiziellen Zahlen von 300 Millionen € Infrastruktur-Förderung bis 2020 mit dem Ziel von 1 Million E-Fahrzeugen bis 2020 ins Verhältnis setzt.

Wird die im Koalitionsvertrag festgelegte Bevorteilung von E-Fahrzeugen bei der Dienstwagenbesteuerung umgesetzt, kommt ein weiterer Vorteil für den Nutzer des Elektroautos hinzu. Nimmt man an, dass das Fahrzeug 4 Jahre als Dienstwagen genutzt wird, der Nutzer einen Grenzsteuersatz von 40 % hat und beim E-Fahrzeug die Pauschalversteuerung auf 0,5 % des Listenpreises pro Monat gesenkt wird, während der Steuersatz beim Benzin-Fahrzeug bei 1 % verbleibt, so zahlt der Nutzer des E-Fahrzeugs genau 1.920 € weniger Steuern für die private Nutzung des Dienstfahrzeugs, obwohl das Fahrzeug in der Anschaffung teurer ist.

Weniger hoch sind die Unterschiede bei der Kfz-Steuer. Das E-Fahrzeug ist nach derzeitiger Rechtslage steuerfrei, für den Benziner wären über 12 Jahre 648 € fällig. Bei einem Fahrzeug mit Dieselantrieb wäre die Steuerbelastung deutlich höher.

Sehr signifikant ist die Differenz bei der Energiebesteuerung. Während die niedrige Stromsteuer von 2,05 Cent pro kWh über die Lebensdauer des Fahrzeugs zu Steuerzahlungen von gut 550 € führen, zahlt der Besitzer des Fahrzeugs mit Benzinmotor über 7.000 € in die Staatskasse.

Noch größere Auswirkungen haben die Flottengrenzwerte für Fahrzeughersteller. Im Jahr 2021 müssen die Fahrzeughersteller im Durchschnitt aller in der EU verkauften Fahrzeuge einen Wert von 95 g CO₂ pro Kilometer einhalten. Pro Gramm Überschreitung und pro Fahrzeug ist eine Strafzahlung von 95 € vorgesehen. Wenn ein Hersteller im betreffenden Jahr über dem Durchschnitt von 95 g liegt, hat der Verkauf eines zusätzlichen E-Fahrzeugs (CO₂ = 0 g/km) für den Fahrzeughersteller einen Wert 9.025 € (95 * 95). Um diesen Betrag würde sich eine eventuelle Strafzahlung reduzieren. Entschieden sich der Kunde dagegen im Beispiel für das Fahrzeug mit Benzinmotor und 110 g CO₂/km, würde sich die Strafzahlung um 1.425 € (15 * 95) vergrößern.

In Deutschland gilt ab dem Jahr 2020, dass Inverkehrbringer von Kraftstoffen eine Treibhausgasminderung von 6 % im Vergleich zu rein fossilen Kraftstoffen nachweisen müssen. Diese CO₂-Minderungen sind zwischen den verpflichteten Mineralölunternehmen handelbar. Argus-Media hat in einer Pressemitteilung vom Juni 2018 CO₂-Vermeidungskosten von 150 €/t CO₂ angegeben. Diese Zahl wurde in den Abschätzungen der Kosten zu Grunde gelegt. Der Stromlieferant, dessen Kunde ein E-Fahrzeug nutzt, ist nicht verpflichtet als Inverkehrbringer von Kraftstoffen, kann jedoch auf Basis der Emissionsdaten des derzeitigen Strommixes THG-Minderungszertifikate erzeugen, die an verpflichtete Kraftstofflieferanten veräußert werden können. Dagegen hat der Lieferant von Kraftstoffen entsprechende THG-Minderungskosten zu tragen.

Insgesamt ergibt sich daraus über die Lebensdauer des Fahrzeugs von 180.000 km und 12 Jahren aus Verbrauchersicht ein möglicher regulierungsbedingter Vorteil von knapp 23.000 € für das E-Fahrzeug. Selbst wenn man beim E-Fahrzeug noch die zu

zahlende EEG-Umlage von derzeit 0,06792 €/kWh berücksichtigt, verblieben gut 21.000 €. Das Fahrzeug mit Benzin-Motor verbraucht im Beispiel insgesamt 10.800 Liter Kraftstoff. Würde man die gleiche regulierungsbedingte Bevorzugung nicht nur dem E-Fahrzeug, sondern auch dem Fahrzeug mit Verbrennungsmotor gewähren, stünden damit fast 2 Euro pro Liter verbrauchten Kraftstoff zur Verfügung. Dazu käme der Warenwert des Benzins, beim heutigen Ölpreis ca. 0,50 Euro pro Liter, insgesamt also ca. 2,50 € pro Liter.

Nach allen vorliegenden Studien können E-Fuels für 1 € bis 1,50 € pro Liter hergestellt werden, wenn die Lernkurven durchlaufen sind. Die ersten Anlagen erfordern höhere Investitionen und werden eine zusätzliche Förderung benötigen.

Um den Hochlauf einer Produktion synthetischer Kraftstoffe zu ermöglichen, hätten zwei Instrumente nach Analyse der Zahlen ein besonderes Potenzial:

Zum einen muss die CO₂-Flottenregulierung unbedingt technologieneutral gestaltet werden, so dass Fahrzeughersteller neben der Effizienzsteigerung und Elektrifizierung auch die Option hätten, die Ziele über das Inverkehrbringen von erneuerbaren Kraftstoffen zusätzlich zu den Verpflichtungen der Mineralölwirtschaft zu erfüllen. Umgerechnet entspricht die Pönale von 95 € pro Gramm und Fahrzeug CO₂-Kosten von 475 € pro Tonne.

Der zweitgrößte Hebel wäre die Änderung der Besteuerung von Kraftstoffen. Der heutige Steuersatz auf Benzin entspricht einer impliziten CO₂-Besteuerung von 230 € pro Tonne CO₂. Eine Befreiung bzw. Reduzierung der Besteuerung von annähernd THG-neutralen synthetischen Kraftstoffen wäre ein weiteres wirksames Instrument, die Marktentwicklung von synthetischen Kraftstoffen zu befördern. Denn auch bei der Umstellung auf E-Fahrzeuge verzichtet der Staat auf ca. 90 % der Energiesteuereinnahmen.

Literatur

- [1] Prognos AG, Fraunhofer UMSICHT, DBFZ: Status und Perspektiven flüssiger Energieträger in der Energiewende, Zwischenbericht Oktober 2017
- [2] International Energy Agency: World Energy Outlook 2017
- [3] BMU: Klimaschutzplan 2050, November 2016
- [4] UBA und BMU: Klimabilanz 2017, Pressemitteilung März 2018
- [5] LBST und dena: The potential of electricity based fuels (e-fuels) for low emission transport in the EU, November 2017
- [6] Boston Consulting Group und Prognos: Klimapfade für Deutschland, Januar 2018
- [7] dena: dena-Leitstudie Integrierte Energiewende, Juni 2018
- [8] Prognos AG, Fraunhofer UMSICHT, DBFZ: Status und Perspektiven flüssiger Energieträger in der Energiewende: Endbericht Mai 2018
- [9] FuelsEurope und Mineralölwirtschaftsverband: Vision 2050 – Weiterentwicklung von Raffinerien und flüssigen Energieträgern, April 2018

Herausforderung und Ansätze zur Bestimmung von Stabilitätskennwerten alternativer Kraftstoffe

Simon J. Eiden, A. Singer, S. Feldhoff

Abstract

If the amount of alternative fuel and/or their blends is to be increased, their long-term operational safety must be checked. The admixture of alternative fuels such as fatty acid methyl ester (FAME), oxymethylenether (OME) or hydrogenated vegetable oil (HVO) with diesel fuel leads to changes in the chemical and physical properties of fuels. The reactive groups of the added components can cause a decrease in the oxidation stability and lead to faster thermooxidative degradation of the fuel. In autoxidation, different poly and hydrolyses reactions play a role in the aging of fuels. This leads to the formation of sediments among other things. The influences of different storage conditions on the stability characteristics of fuels according to the standard DIN EN 590 as well as other analysis parameters were examined. Furthermore, the interaction with system components was also investigated. The aim of this project is to detect early potential functional impairments.

The challenges of common analysis regarding their usage for alternative fuels like OME were shown. It was shown additionally, that there is a poor correlation of common analysis methods and the long-term stability behavior of the fuels.

In order to integrate a suitable test method for the characterization of the fuels regarding their operational safety in the application technique, a Hardware-in-the-Loop (HiL) test was used.

1 Motivation

Die nachhaltige Energieversorgung in allen Verbrauchssegmenten erfordert neben der Steigerung der Energieeffizienz die schrittweise Ergänzung fossiler Energieträger durch nachwachsende und alternative Rohstoffe. Dem tragen die Europäische Union und die Bundesregierung mit entsprechenden gesetzlichen Regelungen Rechnung [EG 09a; EG 09b; BioNac. 09].

Durch die Entwicklungen im Bereich alternativer Kraftstoffe, wie veresterter Pflanzenöle (Fettsäuremethylester/FAME) und vermehrt dekarbonisierter paraffinischer Produkte wie hydrierter Pflanzenöle (HVO) oder synthetischer Kraftstoffe (XtL) als Substitut zu mineralölstämmigen Produkten, ergeben sich maßgebliche Änderungen hinsichtlich der Zusammensetzung und Produkteigenschaften [Tenboh. 08; Richter 12; Zhang 04].

Seit der Einführung von Produktnormen für Mitteldestillate zur Qualitätssicherung in verschiedenen technischen Anwendungen vor etwa 80 Jahren stehen die Stabilität bei der Lagerung und die anwendungstechnischen Eigenschaften der Produkte im Fokus industrieller und öffentlicher Forschung. Eine immer wiederkehrende Fragestellung ist

die Lagerstabilität von neuen Produktströmen als Substitut für Mitteldestillate in technischen Systemen. Die Lagerstabilität hängt maßgeblich von den Betriebszuständen im technischen System und von den Produkteigenschaften ab.

Ein Kraftstoff, der während längerer Lagerzeiten starke chemische und physikalische Änderungen aufzeigt, gilt als nicht oder nur gering lagerstabil. In diesem Zusammenhang wird auch von Alterung gesprochen. Einflussfaktoren auf das Alterungsverhalten sind bspw. die Lagertemperatur oder Luftfeuchtigkeit (Tankatmung), die zu Änderungen der Produkteigenschaften über die Zeit führen. Chemisch induzierte Änderungen (im Wesentlichen durch Oxidationsreaktionen) werden vor allem durch die Bildung von Säuren, Polymeren oder auch Wasser beobachtet. Aufgrund von Polaritätsunterschieden sind bspw. durch polare Alterungsprodukte und unpolare paraffinische Kraftstoffe kann es unter Umständen zu Phasentrennungen kommen [Schmidt 14; Eiden 13; Eiden 14a; Eiden 17].

Zur Ergänzung von mineralölstämmigen Kraftstoffen werden derzeit überwiegend Fettsäuremethylester (FAME) genutzt. Als Rohstoffe werden Pflanzenöle wie Rapsöl, Sojaöl sowie Palmöl und Altspeisefette (kaskadierte Rohstoffnutzung, UCOME engl.: used cooking oil methyl ester) verwendet. Die Nutzung dieser umgeesterten Öle als reine Kraftstoffe ist wegen ihrer anwendungstechnischen Nachteile (u. a. geringere chemische Stabilität bzw. Lagerstabilität, Korrosionsneigung, geringere Energiedichte und Kältebeständigkeit) nur durch Anpassungen des Systems möglich [Mengel 06; Rheinb. 09; Jaschi. 12; Neulen 15]. Beimischungen von FAME zu Diesel sind gemäß DIN EN 590 bis zu 7 % (V/V) möglich.

Paraffinische Produkte (XtL) wie HVO (hydrotreated vegetable oil, hydriertes Pflanzenöl) weisen o. g. Nachteile nicht auf und können in höheren Konzentrationen zu mineralölstämmigen Kraftstoffen zugemischt werden sofern die Grenzwerte der entsprechenden Anforderungsnormen eingehalten werden [Feldho 16]. Im Gegensatz zur Umesterung führt die Hydrierung von Pflanzenölen oder die Synthese von CO/CO₂ und H₂ zu gesättigten Kohlenwasserstoffen, die aufgrund ihrer Zusammensetzung und Eigenschaften sehr gut als Kraftstoff geeignet sind und eine hohe Oxidationsbeständigkeit aufweisen. In Deutschland ist HVO als Zumischkomponente für Dieselmotoren bereits seit 2012 auf den Markt [FNR 13]. Eine weitere Diversifikation der Kraftstoffe ist zu beobachten. So wurden mit der DIN EN 15940 auch Anforderungen an synthetische Dieselmotoren wie aus GtL- (Gas-to-Liquid) und PtL-Prozessen (Power-to-Liquid) definiert.

In Zukunft ist damit zu rechnen, dass die Diversifikation zur Sicherung der Versorgung zu einer Erhöhung der Anteile von paraffinischen Energieträgern führt.

Weiterhin wird eine Dekarbonisierung der flüssigen Energieträger angestrebt. Dies wird insbesondere dadurch forciert, dass die deutsche Energiewirtschaft im Bereich Stromversorgung vermehrt auf regenerative Energiequellen, wie Windenergie, setzt. Hier stellen Power-to-Liquid (PtL)-Verfahren eine Möglichkeit der Energiespeicherung des regenerativen Stromes in Form eines flüssigen chemischen Energiespeichers dar. Die Kapazitäten von (GtL-, BtL-, CtL-Verfahren und Hydrotreatment-Verfahren (HVO)) werden vermutlich ausgebaut.

Aktuell sind es die Anforderungen an die Diversität und die Nutzung langzeitgelagerter alternativer Kraftstoffe, die die Forschung und Entwicklung vor große Herausforderungen

gen stellen. Zusätzlich unterliegt UCOME aufgrund der unterschiedlichen Ausgangsöle größeren Schwankungen, auch wenn die Anforderungen für FAME nach der DIN EN 14214 eingehalten werden.

Projekthintergrund: Zur Bestimmung der Lagerstabilität von mineralölstämmigen Mitteldestillaten existieren verschiedene Analysemethoden. Bei der Übertragung dieser Methoden auf Mischungen zwischen mineralölstämmigen und alternativen Produkten hat sich in den Untersuchungen bislang keines als uneingeschränkt einsetzbar erwiesen. So kann beispielweise das Lagerstabilitätsverhalten von Kraftstoffen variieren, auch wenn unmittelbar nach der Herstellung identische Stabilitätskennwerte ermittelt wurden. Bei der Alterung von Kraftstoffen wurde beobachtet, dass nicht immer alle Stabilitätskennwerte simultan ansprechen. Derzeit ist kein Kennwert bekannt, der mit höchster Sensitivität zur Identifikation einer beginnenden Kraftstoffalterung führt. Zur Bewertung der Lagerstabilität muss eine kombinierte Betrachtung mehrerer Stabilitätskennwerte erfolgen, wie die Bildung von Säuren und Wasser oder die Aufnahme von Sauerstoff sowie die Entstehung von Sedimenten.

Des Weiteren kommt es durch die Entwicklung und Zumischung zusätzlicher, alternativer Kraftstoffe zu einer weiteren Herausforderung in der analytischen Betrachtung von Kraftstoffblends. Dabei gilt es nicht nur die Einsetzbarkeit der gängigen Standardanalytik hinsichtlich potentieller Interaktionen zwischen Kraftstoffblend und Verfahrensmaterialien (Dichtung, Lösemittel) oder der Messgröße (bspw. Leitfähigkeit flüchtiger Komponenten im Rancimat) zu überprüfen. Je nach Zusammensetzung des alternativen Kraftstoffes gilt es, nicht geeignete Analyseverfahren durch angepasste Analysenkennwerte zu ersetzen. Als Beispiel soll hier OME dienen.

2 Herausforderung bei der Bewertung der Stabilität von Kraftstoffen

Zur Bewertung der Stabilität von Kraftstoffen werden in den Anforderungsnormen genormte bzw. nicht genormte Prüfparameter wie Oxidationsstabilität mittels PetroOxy oder Rancimat, Säurezahl oder thermische oder Lagerstabilität herangezogen. Dabei basieren die verschiedenen Messverfahren auf den unterschiedlichsten Oxidationsprodukten innerhalb der flüssigen Kraftstoffmatrix der Kraftstoffe im Laufe der Alterung. Im Folgenden werden ausgewählte Prüfverfahren sowie deren potentielle Herausforderungen beim Einsatz zur Bewertung der Stabilität von alternativen Kraftstoffen dargestellt.

Oxidationsstabilität mittels PetroOxy nach DIN 16091

Die Kraftstoffprobe wird mit $7 \text{ bar} \pm 0,05 \text{ bar}$ Sauerstoff beaufschlagt und auf $140 \text{ }^\circ\text{C}$ aufgeheizt. Durch die Autoxidationsreaktionen wird Sauerstoff aus der Überstandsluft in die flüssige Kohlenwasserstoffmatrix eingebaut und der Druck im Reaktor fällt in Folge dessen ab. Bei Erreichen eines 10 %igen Druckabfalls wird der Test beendet. Dabei wird der Druckreaktor üblicherweise mit einem Fluor-Elastomer (FPM/FKM mit PTFE überzogen) O-Ring abgedichtet.

Beim Einsatz alternativer Kraftstoffe wurden zum Teil stark schwankende Messwerte bestimmt. In Abbildung 1 werden exemplarisch die ermittelten Oxidationsstabilitäten

nach DIN EN 16091 von vier verschiedenen Blends dargestellt. Dabei fielen die Oxidationsstabilitäten der Mitteldestillat-Blends erwartungsgemäß zu Beginn der Lagerung ab. Während die 50 %ige HVO-Zumischung in den untersuchten Blends im Laufe der Lagerung einen konstanten Messwertverlauf zeigte, stiegen die Messwerte der 10 %igen HVO-Blends wie des reinen Mitteldestillats im Laufe der Lagerzeit an. Vermutlich werden hier die reaktiven Zentren der flüssigen Kohlenwasserstoffmatrix durch die Autoxidation bereits vermehrt besetzt, so dass ein weiterer Einbau des Sauerstoffs zusätzliche Zeit bzw. Energie benötigt. Das reine HVO zeigte zwar eine im Vergleich zu den übrigen Blends niedrigere Oxidationsstabilität, blieb aber über die Lagerzeit auf einem konstanten Level. Auffällig war die erhöhte Oxidationsstabilität der Mitteldestillat-HVO-Blends im Vergleich zu den jeweiligen Reinkomponenten, das auf mögliche Interaktionen der beiden Kraftstoffkomponenten schließen lässt.

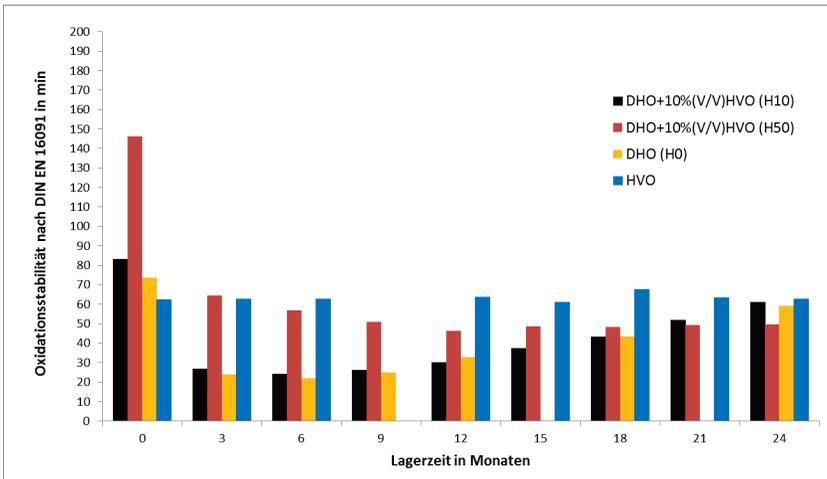


Abbildung 1: Oxidationsstabilität nach DIN EN 16091 verschiedener Mitteldestillat-Blends; DHO: Domestic Heating Oil; HVO: hydrogenated Vegetable Oil

Die Messungen der Oxidationsstabilität von OME in der Mischung OME 3-5 machen eine Modifikation der Versuchsparameter nötig. So wurde bspw. beim Einsatz im PetroOxy-Test nach DIN 16091 eine deutliche Quellung des Dichtungsmaterials aufgezeigt (Abbildung 2).

Der Querschnitt des O-Rings nahm dabei von 3,5 mm auf 4 mm zu. Während der Versuchsreihe kam es des Weiteren zur Bildung von Sedimenten.



Abbildung 2: O-Ring (FKM mit PTFE-Überzug) vor (links) und nach (rechts) dem Versuch mit OME 5

Oxidationsstabilität mittels Rancimat nach DIN EN 15751

Die Kraftstoffprobe wird auf 110,9 °C aufgeheizt und mit einem Luftstrom durchströmt. Die während des Oxidationsprozesses freigesetzten leichtflüchtigen Oxidationsprodukte werden über den Luftstrom in eine Messzelle mit deionisiertem Wasser geführt. Dabei wird die Leitfähigkeit der wässrigen Lösung detektiert. Durch die Dissoziation von flüchtigen Carbonsäuren erhöht sich die Leitfähigkeit. Die Messung wird bei Erreichen von 200 µS/cm abgebrochen. Über die Tangenten an Plateauphase und Steigphase wird die „Oxidation Induction Time“ (OIT) ermittelt.

Nach Norm wird das Verfahren nur bei Kraftstoffen mit einem Mindestanteil an FAME von 2 % (V/V) eingesetzt.

Der Einsatz von hydrierten Pflanzenölen oder gesättigten Kohlenwasserstoff-Produkten zeigten bislang keine Auffälligkeiten in der Rancimat-Methode. Analog zu den Messungen mittels PetroOxy wurden ebenfalls schwankende Messwerte über die Langzeitlagerung ermittelt. Auch hier scheint dabei die Beschaffenheit der Kraftstoffprobe ausschlaggebend auf die ermittelten Messwerte zu sein.

Der Einsatz von OME kann, rein von der Methode, ebenfalls über die Rancimat-Methode vermessen werden. Allerdings können die zurzeit verfügbaren OME-Qualitäten produktionsbedingt einen signifikanten Anteil an leichtflüchtigen Komponenten wie Ameisensäure aufweisen. Durch die verfahrensbedingte Auslegung des Rancimat-Testes kommt es daher zu Beginn der Messung zu einem starken Anstieg der Leitfähigkeit (Abbildung 3). Die automatische Auswertung der Methode führt dabei zu geringen OIT-Werten unter 1 h. Der Einsatz eines Diesel / OME 3-5 Blends (70/30) zeigt außerdem exemplarisch einen zweiten Anstieg des Messsignals zum Ende des Testlaufes. Vermutlich wird hier die eigentliche Autoxidation detektiert.

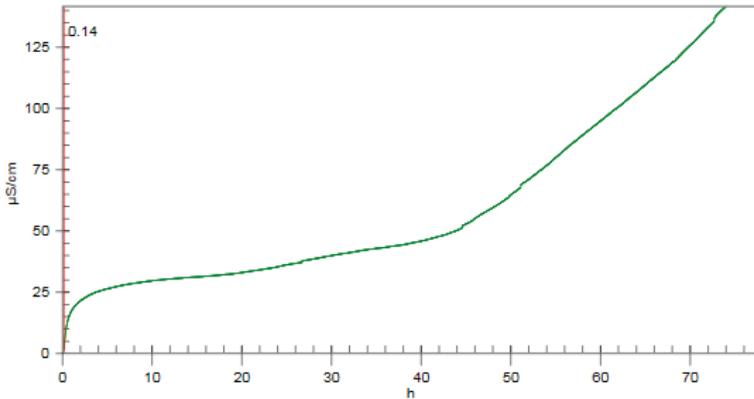


Abbildung 3: Verlauf des Messsignals des Rancimat-Tests beim Einsatz eines Diesel / OME Blends (70/30)

Thermische Stabilität nach DIN 51371

Durch die Messung der thermischen Stabilität sollen Aussagen zur Sedimentbildung des Kraftstoffs aufgrund einer thermischen Belastung getroffen werden. Dabei wird die Kraftstoffprobe zunächst über einen Cellulosenitrat-Filter filtriert. Das Filtrat wird über 16 h in Gegenwart von Kupfer als Katalysator bei 105 °C gestresst. Nach Erreichen der Raumtemperatur wird die Kraftstoffprobe wiederum filtriert. Der filtrierbare als auch nicht-filtrierbare Rückstand wird als thermische Stabilität in mg/kg angegeben.

Bereits bekannt ist, dass die zum Teil starken Ablagerungen aufgrund von Alterungsprozessen in den Kraftstoffen möglicherweise zu Filterblockaden oder auch Zersetzungen führen kann. Der Einsatz von FAME macht zum Teil den Wechsel von Cellulosenitrat-Filtern zu Glasfaserfiltern nötig.

Die Bestimmung der thermischen Stabilität von hydrierten Produkten zeigte bislang keine Auffälligkeiten. Voll-hydrierte Produkte führten zu sehr geringen Messwerten.

Die ersten Untersuchungen mit OME als Reinkomponente oder auch als Blend führte zu erheblichen Schwierigkeiten bei der Bestimmung der thermischen Stabilität. Der Einsatz von Cellulosenitrat-Filtern ist nicht geeignet (Abbildung 4). Dabei wird der Filter nahezu komplett aufgelöst und setzt den Sinter-Filter zu.



Abbildung 4: Cellulosenitrat-Filter während der Bestimmung der thermischen Stabilität von OME 3-5

In Abbildung 5 ist die Ermittlung der thermischen Stabilität mit Hilfe von Glasfaser-Filtern gezeigt. Auch hier wurde ein Angriff auf das Filtermaterial beobachtet.



Abbildung 5: Glasfaser-Filter während der Bestimmung der thermischen Stabilität von OME 3-5

Dabei bleibt der Filter auf der Sinter-Filterzscheibe haften und kann nur schwer abgezogen werden. Dadurch wird die Auswertung mit Messwerten im mg/kg-Bereich beeinflusst. Die ermittelten Sedimentmengen werden tendenziell zu gering ausfallen, da Bestandteile des Filters nicht mehr berücksichtigt werden können.

Während der Bestimmung der thermischen Stabilität wurde des Weiteren eine potentielle Interaktion von OME 3-5 mit Mitteldestillaten aufgezeigt. Dabei wurden zwei unterschiedliche Mitteldestillate eingesetzt und mit 15 % bzw. 50 % OME 3-5 geblendet. In den 15 % OME-Blends wurden optisch keine Auffälligkeiten beobachtet. In den 50 % Blends wurde nur in einer Mitteldestillat-Qualität eine deutliche Farbänderung beobachtet.



Abbildung 6: Mitteldestillat / OME Blend (50/50) vor (links) und nach (rechts) der thermischen Belastung nach DIN EN 51371

3 Herausforderungen von Kraftstoffblends in der Anwendungstechnik

Die eingesetzten Analysen spiegeln den IST-Zustand des Kraftstoffes wider und lassen daher eine Vorhersage auf die Lagerstabilität oder Betriebssicherheit in der technischen Anwendung nur schwer zu.

Hoffmann zeigte eine stark verkürzte Betriebszeit in Standheizersystemen aufgrund einer FAME-Zumischung auf [Hoffma. 10]. Eiden zeigte auf, dass die Beständigkeit von FAME-haltigen Blends nicht nur auf den eingesetzten FAME, sondern vielmehr

auf die Wechselwirkung von FAME mit den unterschiedlichen Kraftstoffzusammensetzungen zurück zu führen ist [Eiden 14b].

Ähnliche Ergebnisse wurden durch Feldhoff in einem anwendungsnahen Prüfstand beobachtet, in welchem eine FAME-Qualität in unterschiedlichen Mitteldestillaten zu verschiedenen Bauteilausfällen und Standzeiten führte [Feldho 16]. Neulen wies nach, dass Ablagerungen / Polymerisationsprodukte oftmals für den Ausfall von kraftstoffführenden Bauteilen verantwortlich sind [Neulen 15]. Des Weiteren wurde gezeigt, dass die Standardanalysen (Lager- Thermstab nach DIN 51371 bzw. 51471 oder Gesamtverschmutzung nach DIN EN 12662 für eine Korrelation mit Bauteilausfällen nicht ausreichen. Diese Analytik zur Ablagerungsbildung ist durch ihre Messgenauigkeit, aber vor allem durch ihre Messgrenze limitiert. Eiden zeigte weiterhin, dass eine hohe Gesamtverschmutzung in der Eingangsanalytik in der Lagerung nicht zu einer Ablagerungsbildung führen muss [Eiden 14b].

Bei Langzeitverbrennungsversuchen wurden sowohl Mischungen aus einem fossilen Mitteldestillat (Heizöl EL schwefelarm) und hydriertem Pflanzenöl als auch die jeweiligen Reinstoffe untersucht. Dabei wird ein Flammrohr kontinuierlich mit den jeweiligen Mitteldestillaten befeuert. Über einen intermittierenden Betrieb werden in kürzerer Versuchszeit das Langzeitverhalten der Verbrennung nachgestellt. Dabei werden neben On/Off-Zeiten auch die Nachtsenke bzw. der Dauerlauf zur Warmwasserbereitstellung berücksichtigt.

Die Analysen der Mischungen zeigten keine Auffälligkeiten. Während des Betriebs wurden Ablagerungen am Düsensinterfilter festgestellt.



Abbildung 7: Düsensinterfilter nach den Verbrennungsversuchen mit verschiedenen Blends: iso-H100: isomerisiertes HVO; iso-H10: Mischung 10 % isomerisiertes HVO mit Heizöl EL schwefelarm; iso-H50: Mischung 50 % isomerisiertes HVO mit Heizöl EL schwefelarm; n-H10: Mischung aus 10 % teilisomerisiertem HVO und Heizöl EL schwefelarm [nach Feldho 16].

Aus den Analysen und den Beobachtungen wird vermutet, dass die gebildeten, polaren Alterungsprodukte in der unpolaren Kohlenwasserstoffmatrix der hydrierten Pflanzenöle nicht weiter in Lösung gehalten werden konnten.

4 Einsatz von alternativen Messverfahren

Aufgrund der zuvor beschriebenen Interaktionen der alternativen Kraftstoffe untereinander, aber auch mit Materialien der Analysengeräte, bzw. Herausforderungen bzgl. der Datenauswertung gilt es, die gängigen und in den jeweiligen Anforderungsnormen der Kraftstoffe definierten Analyseverfahren zu modifizieren und auf die alternativen Kraftstoffe anzupassen. Dabei müssen auch die Auswerterroutinen und Grenzwerte der entsprechenden Normung überdacht werden.

Alternativ zur Bestimmung der Lagerstabilität dient der am OWI entwickelte BigOxy-Test [Koch 17]. Neben der forcierten Beanspruchung der Kraftstoffe bei der definierten bzw. an die Anwendungstechnik angepassten Prüftemperatur und der Sauerstoffbeaufschlagung wird der BigOxy-Test durch die Deltawertbetrachtung der Analysenkennwerte definiert. Dabei werden die Kraftstoffe sowohl zu Beginn, also im frischen Zustand, als auch nach der definierten Beanspruchung im BigOxy-Prüfstand analytisch betrachtet. Je nachdem wie der Kraftstoff auf die beschleunigte Alterung anspricht, können Aussagen über das Lagerstabilitätsverhalten getroffen werden.

Mit der Schnellalterungsmethode wurde innerhalb von 64 h ($T_{\text{Kraftstoff}} = 105\text{ °C}$) die gleiche Differenzierung der Brennstoffe wie bei der Langzeitlagerung ($T_{\text{Kraftstoff}} = 8\text{ °C}$ und 40 °C) innerhalb von 18 Monaten erzielt.

Für eine anwendungsnahe Untersuchung der Betriebssicherheit wurde ein Komponentenprüfstand als Hardware-in-the-Loop Verfahren (HiL) entwickelt. In vier Strängen der Prüfapparatur können unterschiedliche Alterungsbedingungen eingestellt werden. Eine schematische Zeichnung ist in Abbildung 8 dargestellt.

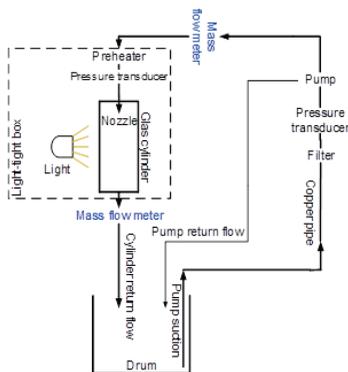


Abbildung 8: Schema des Komponentenprüfstands
(ein Prüfstrang; der Prüfstand besteht aus vier identischen Prüfsträngen)

Der Kraftstoff wird in einem Stahlfass bevorratet. Er wird durch eine Kupferleitung und einen Filter gepumpt, bevor er die Pumpe erreicht. Der Pumpenrücklauf führt direkt zurück in das Fass. Die Druckleitung führt über einen Ölvorwärmer zu der Düse. Die Düse sprüht das Mitteldestillat in einen Glaszylinder. Am Boden des Glaszylinders wird das Mitteldestillat wieder aufgefangen und zurück in das Fass geleitet. Um den Glas-

zylinder herum sind Tageslichtlampen angebracht, um den Alterungsvorgang zu beschleunigen. Ein Druckaufnehmer zwischen Filter und Pumpe wird genutzt, um eine potenzielle Filterverblockung zu detektieren. Ein weiterer Druckaufnehmer befindet sich zwischen Ölvorwärmer und Düse. Ferner wird der Durchfluss durch die Düse gemessen. Hierdurch kann eine Düsenverlegung detektiert werden. Wenn der Durchfluss abnimmt, gleichzeitig jedoch der Druck zwischen Ölvorwärmer und Düse konstant bleibt, so wird die Düse zunehmend durch Ablagerungen verstopft. Wenn der Durchfluss und der Druck abnehmen, ist der Ölvorwärmer verstopft. Wenn der Druck zwischen Filter und Pumpe sinkt, ist der Brennstofffilter belegt. Eine blockierte Pumpe wird über beide Druckmessstellen detektiert.

Nach 1.000 Betriebsstunden wird der Test beendet. Falls der Prüflauf vor Ablauf von 1.000 Stunden durch einen Bauteilausfall gestoppt wird, so wird die entsprechende Komponente bis zu dreimal getauscht und der Test fortgesetzt. Die Standard Stopp-Kriterien sind in Tabelle 1 aufgelistet.

Die Prüfmedien werden zudem nach 0 h, 500 h und 1.000 h analytisch bewertet.

Tabelle 1: Stopp-Kriterien

Komponente	Stopp-Kriterium
Filter	Druck < -400 mbar (relativ), gemessen zwischen Filter und Pumpe
Pumpe	Motor dreht nicht mehr
Ölvorwärmer	Abnahme des Durchflusses
Düse	Durchfluss erreicht 80 % des Ausgangswertes

5 Fazit

Die gängigen Analysenmethoden zur Bestimmung der Stabilität von Kraftstoffen mit alternativen Anteilen wie PetroOxy, Rancimat oder auch thermische Stabilität sind zur Ermittlung der chemischen und physikalischen Lagerstabilität von Mehrkomponenten-Kraftstoffen nicht ausreichend. Dabei werten die gängigen Messverfahren stets die flüssige Kohlenwasserstoffphase aus, während potentielle Ablagerungen, die sich meist am Boden ansammeln, vernachlässigt werden.

Durch die zukünftige Beimischung weiterer regenerativer Kraftstoffe erhöht sich zwangsläufig auch die Blendmatrix. Je nach Reaktivität der alternativen Kraftstoffkomponente bzw. Beständigkeit der Materialien werden Anpassungen der standardmäßigen Analyseverfahren nötig. Derzeit existiert kein analytisches Prüfverfahren mit welchem anwendungsübergreifend das Lagerstabilitätsverhalten von Brenn- und Kraftstoffen bestimmt werden kann. Die Reaktionswege von mineralölstämmigen, synthetischen und pflanzlichen Brenn- und Kraftstoffen ähneln sich. Hieraus wird ersichtlich, dass ein Prüfverfahren benötigt wird, das die Reaktionsprodukte aller Produktklassen ausreichend berücksichtigt.

Die Vermutung liegt nahe, dass die unterschiedlichen Ablagerungen zu verschiedenen Herausforderungen in den Systemkomponenten führen. Als Detailanalytik werden zurzeit vor allem Trennmethode wie die Gaschromatographie mit Flammen-Ionisations-Detektor oder Massenspektroskopie eingesetzt. Die Verwendung von Infrarot-Spektroskopie (IR) steuert weitere wichtige Informationen bei kürzerer Messdauer bei.

Für eine Sicherstellung der Einsatzfähigkeit im Gesamtsystem gilt es, die Analyseverfahren auf die entsprechende Anwendungstechnik hin anzupassen. Durch die Korrelation von definierter und beschleunigter Degradation, aussagekräftiger Kraftstoffanalytik und Systemkomponenten-Interaktion kann das jeweilige System besser wiedergegeben und untersucht werden.

Durch den Einsatz von sogenannten Hardware-in-the-Loop (HiL) Prüfständen kann nicht nur der Kraftstoff definiert und beschleunigt degradiert werden, sondern wird durch die Untersuchung der anwendungsnahen Gesamtsystemkomponenten ebenfalls mit Komponentenausfällen und Analysedaten korreliert.

Hier gilt es, die Versuchsparameter der entsprechenden Anforderungsnorm näher an die jeweiligen Gesamtsysteme zu adaptieren und die Kohlenwasserstoffe gezielten Anwendungstests zu unterziehen.

Literatur

- [Ackerm. 15] H. Ackermann „Ablagerungsbildung in vormischenden Brennersystemen - Untersuchung zur Ursache und Minimierung durch Modifikation der Verdampfer-Oberfläche“ DGMK Projekt 749 (IGF-Vorhaben-Nr.: 17600 N), 2015
- [BioNac. 09] Biokraftstoff-Nachhaltigkeitsverordnung (Biokraft-NachV) vom 30.09.2009
- [EG 09a] „Erneuerbare Energien Richtlinie 2009/28/EG vom 23.09.2009“
- [EG 09b] Kraftstoffqualitätsrichtlinie 2009/30/EG vom 23.04.2009
- [FNR 13] „Basisdaten Bioenergie Deutschland (08/2013)“
- [Jaschi. 12] C. Jaschinski und O. van Rheinberg „Ablagerungsbildung durch 20 % (V/V) FAME Brennstoffe in Vormischbrennersystemen“ DGMK Forschungsbericht 714, ISBN 978-3-941721-28-9, IGF Vorhaben-Nr.: 16129 N, 2012
- [Mengel 06] C. Mengel, A. Fiscoeder, K. Lucka „Untersuchungen zur Ablagerungsbildung in Brennersystemen“ DGMK Forschungsbericht 619, ISBN 3-936418-46-2, IGF Vorhaben-Nr.: 13848N1, 2006
- [Neulen 15] M. Neulen, S. Feldhoff, W. Koch „Anwendungstechnische Eigenschaften flüssiger Brennstoffe mit biogenen Anteilen“ DGMK Forschungsbericht 729, ISBN 978-3-941721-53-1, 2015
- [Feldho. 16] S. Feldhoff, A. Awgustow; S. Kureti; T. Kuchling „Hydriertes Pflanzenöl als Substitut für Heizöl EL schwefelarm“ DGMK Forschungsvorhaben 743; ISBN 978-3-941721-63-0, 2016
- [Rheinb. 09] O. van Rheinberg, H. Dirks; K. Lucka, H. Köhne „Ablagerungsbildung durch 5 % FAME Blends in Vormischbrennersystemen“ DGMK Forschungsbericht 661, ISBN 978-3-941721-04-03, IGF Vorhaben-Nr.: 14784N, 2009
- [Tenboh. 08] S. Tenbohlen, R. Seibold, M. Koch „Das Alterungsverhalten verschiedener Esterflüssigkeiten für Leistungstransformatoren“ 3. ETG Fachtagung, 16/17.09.2008 Würzburg, 2008
- [Richter 12] B. Richter, T. Sadlowski, U. Schürmann, V. Wichmann „Einfluss von Biokraftstoffblends auf moderne Dieselmotoren und deren Abgasnachbehandlungssysteme“ Vorhaben Nr. 6010280, 2012

- [Zhang 04] X. Zhang „Alterungsmechanismen ökologisch verträglicher Druckflüssigkeiten“, Dissertation RWTH Aachen, 2004
- [Eiden 13] S.J. Eiden, W. Koch „Einfluss von Fettsäuremethylester auf die Lagerstabilität von Mitteldestillaten und die Betriebssicherheit von Heizölbrennersystemen und Standheizersystemen aus dem Automobilbereich“, Mineralöltechnik 59 Jhg., UNITI, ISSN: 0341-1893, 2013
- [Eiden 14a] S.J. Eiden, W. Koch, H. v. Schloß, B. Leuchtle, W. Xie, L.M. Blank, M. Zimmermann „Ursache und Gefahr einer mikrobiologischen Kontamination in Heizöl EL A Bio“, Erdöl Erdgas Kohle 130 jhg. Heft 10, ISSN: 0179-3187, 2014
- [Eiden 14b] S. Eiden; W. Koch, H. v. Schloß „Expertengruppe Brennstoffe – Arbeitspaket 6 Untersuchungen zum Einfluss der Heizölmatrix auf Analysenparameter“, Bericht für das Institut für Wärme und Oeltechnik, 2014
- [Eiden 17] S.J. Eiden; B. Leuchtle, K. Brendel, L.M. Blank „Entstehung von Mikroemulsionen (Wasser/Öl); deren Stabilisierungsmechanismen und Einfluss auf die Betriebssicherheit von Mitteldestillaten am Beispiel von Heizöl EL, A und Bio in technischen Applikationen, DGMK Forschungsprojekt 770, ISBN 978-3-941721-82-1; IGF Vorhaben-Nr.: 18163 N, 2017
- [Schmidt 14] L. Schmidt „Wechselwirkungen zwischen Kraftstoffkomponenten in biodieselsbasierten Mischkraftstoffen unter besonderer Berücksichtigung der Alterungsprodukte von Fettsäuremethylestern“, Dissertation TU Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig, 2014
- [Koch 17] W. Koch, S. Eiden, S. Feldhoff, D. Diarra „Entwicklung einer neuen Prüfmethode zur Bewertung der Stabilität von Heizölen mit biogenen Anteilen, DGMK Forschungsbericht 763, Hamburg, 2017

Normen:

- [DIN EN 590]
[DIN EN 14214]
[DIN EN 15940]

Erneuerbare Kraftstoffe und Chemikalien aus Strom, CO₂ und Dampf

Karl Hauptmeier

Abstract

The PowerCore — a solid oxide cell (SOC) stack — is Sunfire's key technology for the production of steam electrolyzers (solid oxide electrolyser cells, SOECs) and high-temperature fuel cells (solid oxide fuel cells, SOFCs). Therefore, it can be used to convert electrical energy into chemical energy as well as to convert various liquid and gaseous fuels based on hydrocarbons (natural gas, LPG) into electricity and heat.

The Power-to-Liquids process is built around Sunfire's solid oxide electrolysis cells (SOECs) and facilitates the conversion of regenerative power, CO₂ and steam into synthetic gas (methane) or a crude oil substitute (e-Crude) which can be refined to chemicals or fuels such as petrol, diesel and kerosene.

1 SOC als Kerntechnologie

Der PowerCore — ein Festoxid-Zellen-Stapel (solid oxide cell stack, SOC-Stapel) — ist die Schlüsseltechnologie von Sunfire für die Produktion von Dampf-Elektrolyseuren (solid oxide electrolyser cells, SOEC) und Hochtemperatur-Brennstoffzellen (solid oxide fuel cells, SOFC). Er kann damit sowohl zur Wandlung elektrischer Energie in chemische Energie als auch zur Wandlung verschiedener flüssiger und gasförmiger Brennstoffe auf Kohlenwasserstoffbasis (Erdgas, LPG) in Strom und Wärme genutzt werden.

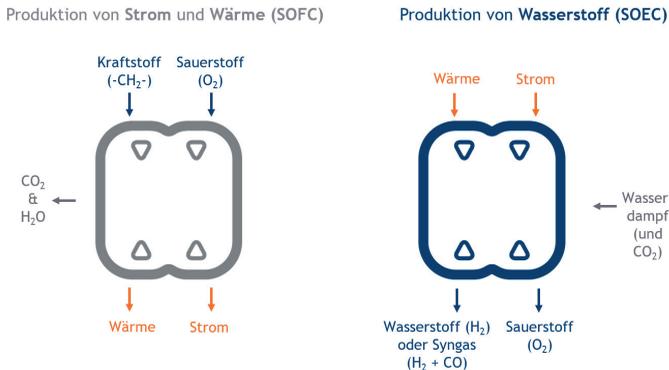


Bild 1: Schaubild SOFC / SOEC Betriebsmodi

Die SOC wird erst bei Temperaturen von mehreren hundert Grad leitfähig. Daraus leitet sich die Eigenschaft eines Hochtemperaturprozesses ab. Die sich daraus ergebende Kinetik eliminiert die Überspannung an der Elektrode quasi gänzlich.

Aus diesen technischen Gegebenheiten leiten sich folgende Vorteile der SOC-Elektrolyse gegenüber einer Flüssigwasserelektrolyse (PEM, Alkali) ab:

1. Maximale elektrische Energieeffizienz durch Nutzbarkeit von Abwärme zur Überwindung der Verdampfungsenthalpie und fehlende Überspannung.

Erläuterung: Bei der Herstellung von Wasserstoff aus Wasser müssen zwei Energieniveaus überwunden werden:

- a. Die physikalische Bindung der Wassermoleküle untereinander beim Übergang vom flüssigen in den gasförmigen Zustand (44 kJ/mol).
- b. Die chemische Bindung zwischen Wasserstoff und Sauerstoff innerhalb der Moleküle beim Übergang von Wasserdampf zu Wasserstoff + Sauerstoff (241,8 kJ/mol).

Bei dem Hochtemperaturprozess der SOEC wird Dampf reduziert, der vor Einbringung in den Prozess mittels Abwärme $> 100\text{ °C}$ erzeugt werden kann. Da Abwärme an vielen Orten günstiger als Elektroenergie ist, stellt sich dadurch ein wirtschaftlicher Vorteil ein. Weiterhin sorgt die fehlende Überspannung für geringere Wärmeverluste als bei einer Flüssigwasserelektrolyse.

2. Reduzierbarkeit von CO_2 durch Kohlenstofftoleranz: Im Gegensatz zu Flüssigwasserelektrolysen wird bei der SOEC reiner Sauerstoff durch die Membran ausgetragen. Dies ermöglicht die Reduktion von gasförmigen Oxiden. Damit lässt sich nicht nur H_2O zu H_2 , sondern auch CO_2 zu CO reduzieren. Dies ist von erheblicher Bedeutung, da zur Synthese von Kohlenwasserstoffen (Sabatier, Methanol, Fischer-Tropsch) CO_2 reduziert werden muss. Weiterhin ist Synthesegas neben Wasserstoff ein wesentliches Edukt der chemischen Industrie.

Sunfire achtet bei der Entwicklung seiner SOC-Technologie strikt auf die Verwendung industriell verfügbarer Materialien sowie die Produzierbarkeit mittels bestehender Fertigungstechnologien. Die Skalierung der Leistungsklassen erfolgt über die Verschaltung von mehreren Zellen in Stacks, die wiederum zu größeren Stack Units verschaltet werden. Die Leistungsklasse einer SOEC-Stack Unit liegt im dreistelligen kW_{el} -Bereich.

Bild 2 zeigt eine Stack Unit inkl. Balance of Plant zur Gasversorgung, als Einheit „Modul“ genannt. Die Skalierung zu MW-Projekten geschieht durch Verschaltung mehrere solcher Module.



Bild 2: SOEC Modul

2. Produkte und Verfahren

Sunfire bietet für die oben beschriebenen Ziele im Bereich PtX verschiedene Produkte und Verfahren an:

2.1 Sunfire-HyLink und Sunfire-HyLink+

Sunfire-HyLink steht für einen reinen Wasserstoffherzeuger auf SOC-Basis, der Wasserdampf und Elektroenergie aufnimmt und Wasserstoff abgibt.

Bild 3 zeigt ein solches System:

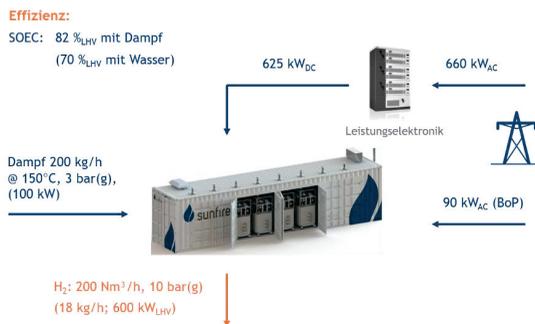


Bild 3: Systemleistung und Schnittstellen für Sunfire-HyLink

Sunfire-HyLink+ ist eine Weiterentwicklung von Sunfire-HyLink. Sunfire-HyLink+ beinhaltet ebenfalls einen Wasserstoffherzeuger, der jedoch während Dunkelflauten (zu geringes Angebot an erneuerbarer Elektroenergie) als Erdgasreformer fungiert. In diesem Modus arbeitet die SOC als Brennstoffzelle und stellt Elektroenergie (und ggf.

Wärme) bereit. Zusätzlich wird dem Kunden ein Vielfaches des durch die Brennstoffzelle verbrauchten Wasserstoffs aus Erdgas bereitgestellt, so dass die Wasserstoffherzeugung für den Kunden aufrecht erhalten bleibt.

Die konstante Wasserstoffversorgung auch während der Dunkelflauten ist für viele Industriekunden zur Aufrechterhaltung ihrer kapitalintensiven Prozesse unverzichtbar. Die Bereitstellung elektrischen Stroms in Zeiten hoher Börsenpreise ist dabei als positiver Nebeneffekt einzuordnen.

2.2 Sunfire-SynLink

Sunfire-SynLink steht für einen Synthesegaserzeuger auf SOC-Basis, der CO_2 , Wasserdampf und Elektroenergie aufnimmt und Synthesegas ($\text{CO} + \text{H}_2$) abgibt. In der Fachwelt wird eine solche Elektrolyse als Coelektrolyse bezeichnet:

Technisch unterscheidet sich Sunfire-SynLink von Sunfire-HyLink durch eine komplexere Abkühlstrecke: Unter der Zielstellung optimaler Energieeffizienz müssen die Produktgase im Gegenstromwärmetausch zu den Eduktgasen abgekühlt werden. Auf Grund des geringen C/O-Verhältnisses durchlaufen sie dabei das thermodynamische Rußfenster. Eine Rußbildung ist jedoch unbedingt zu vermeiden. Die Realisierung einer solchen Abkühlstrecke stellt die wesentliche Kompetenz bei der Weiterentwicklung von Sunfire-HyLink zu Sunfire-SynLink dar. Die folgende Übersicht (Bild4) zeigt ein solches System.



Bild 4: Systemleistung und Schnittstellen für Sunfire-SynLink

2.3 Einbettung der SOC-Technologie in Power-to-Gas und Power-to-Liquids

Unter Power-to-Gas und Power-to-Liquids werden im Folgenden Prozesse zur Herstellung von gasförmigen (PtG) oder flüssigen (PtL) Brenn- und Kraftstoffen verstanden. Die Herstellung von Wasserstoff (Sunfire-HyLink) oder reinem Synthesegas (Sunfire-SynLink) sind dabei (nur) Teilprozesse.

Sunfire-HyLink kann all denjenigen Synthesen direkt vorgeschaltet werden, die direkt mit CO_2 Kohlenwasserstoffe synthetisieren. Das betrifft vor allem die Synthese von

Methan am Nickel-Katalysator (Sabatier-Prozess) und Methanol am Kupferkatalysator.

Andere Synthesen, vor allem die Fischer-Tropsch-Synthese, benötigen Synthesegas, d.h. Kohlenstoffmonoxid und nicht Kohlenstoffdioxid, da die Reduktion von CO_2 zu CO im finalen Syntheseprozess für einen wirtschaftlichen Prozess zu langsam abläuft. Um Synthesegas zu erzeugen, gibt es zwei Alternativen:

1. Kombination von Sunfire-HyLink mit einer reversen Wassergas-Shift Reaktion (RWGS): In der endothermen RWGS wird CO_2 mittels H_2 aus Sunfire-HyLink bei Temperaturen um die 1000 °C an einem Nickelkatalysator zu CO reduziert. Nach Trocknung des Synthesegases steht es für den Folgeprozess zur Verfügung.
2. Direkter Einsatz von Sunfire-SynLink zur Erzeugung von Synthesegas (Co-Elektrolyse)

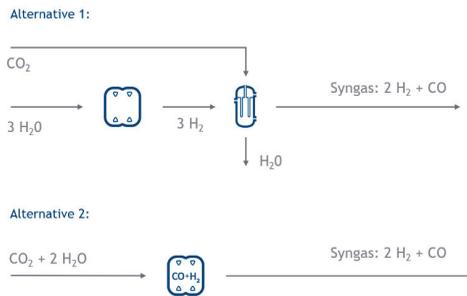


Bild 5: Gegenüberstellung der Synthesegaserzeugung mittels Sunfire HyLink + RWGS und Sunfire-SynLink

Sunfire hatte sich zu Beginn der Entwicklung auf Sunfire-HyLink konzentriert und daher für die erste PtL-Anlage Fuel 1 in Dresden einen RWGS-Reaktor entwickelt.

Die dabei gewonnenen Ergebnisse, insbesondere zur Synthesegasabkühlung, fließen in die aktuell laufende Sunfire-SynLink-Entwicklung ein. Die gezielte Entwicklung von Sunfire-SynLink begann im Jahr 2016 mit dem Beginn eines BMBF-geförderten Kopernikus Projektes (03SFK2Q0).

Die Vorteile der Synthesegaserzeugung mittels Sunfire-SynLink gegenüber Sunfire-HyLink & RWGS liegen auf der Hand:

1. Geringere spezifische Investitionskosten: Die RWGS als Apparat entfällt inkl. Peripheriekomponenten. Die Kapitalkosten der RWGS sind teurer als die Zusatzkosten der Sunfire-SynLink-Abkühlstrecke.
2. Höherer Wirkungsgrad: Rein theoretisch liegen Sunfire-HyLink & RWGS und Sunfire-SynLink wirkungsgradseitig gleichauf (s. Wirkungsgradvergleich unten).

In der Praxis werden jedoch Wärmeverluste (geringere Oberfläche) sowie Elektroenergieverbrauch für Peripherie-Komponenten eingespart.

3. Geringerer Bedarf an Wasserdampf: Für Sunfire-HyLink & RWGS müssen je Mol Kohlenstoff drei Mol Wasser reduziert werden. Für Sunfire-SynLink sind es nur zwei (siehe Formeln in Bild 5). Der verringerte Wärmebedarf kann eingespart oder für andere Zwecke verwendet werden.



Bild 6: RWGS-Reaktor Fuel 1

3 Power-to-Liquid Produktkosten

Die Produktionskosten des PtL-Prozesses sollen durch folgende Grenzwertbetrachtung verdeutlicht werden:

Stellen wir uns eine über alle praktischen Grenzen hinaus perfektionierte (nicht realisierbare) PtL-Technologie mit einem Wirkungsgrad und Umwandlungsgrad von 100 % und einem Capex von Null vor. Bezüge eine solche Anlage Elektroenergie zum Preis von 3 €/kWh, betrügen die Kosten für ein Barrel Rohölersatz:

$$159 \text{ Liter/Barrel} \times 9,2 \text{ kWh/Liter} \times 0,03 \text{ €/kWh} = 43,88 \text{ €/Barrel}$$

Hinzu kämen noch Kosten für die CO₂-Bereitstellung, welche wir hier bei 40 €/Tonne ansetzen:

$$159 \text{ Liter/Barrel} \times 2,4 \text{ kg/Liter} \times 0,04 \text{ €/kg} = 15,26 \text{ €/Barrel}$$

Unter diesen Bedingungen wäre also mit Elektroenergie- & Rohstoffkosten von ca. 59 €/Barrel zu rechnen. Schnell wird deutlich, dass der primäre Kostentreiber die Elektroenergie ist. Ein häufiger Fehler bei der strategischen Einordnung von PtL ist dessen Behandlung als Energiequelle. PtL ist ein Energiewandler, vergleichbar mit einem Ladegerät. Die Kosten der Produktbereitstellung sind somit maßgeblich von den ursprünglichen Kosten der Elektroenergie abhängig.

Hier kommt jedoch auch einer der großen Vorteile der PtL-Technologie zum Tragen. Da Erzeugung und Verwendung des Kraftstoffes zeitlich und räumlich entkoppelbar sind, kann die Nutzung des Stroms an die Vorkommen der erneuerbaren Energien angepasst werden. Dies bedeutet, dass die Erzeugung örtlich zum Standort der besten Erzeugung, aber auch zeitlich zum Moment der höchsten Bereitstellung verlagert werden kann. Eigenschaften, die für das Energiesystem der Zukunft unentbehrlich sind.

Einige Standorte in Europa bieten bereits heute Stromkosten von 3 €ct je kWh. Dass es bei guten Bedingungen noch günstiger geht, hat Enel unlängst bewiesen. Bei einer in Ausschreibung in Mexico wurde Wind-Strom 2017 zu einem Verkaufspreis von 1,77 €ct/kWh geboten [1]. Selbst der vergleichsweise teure Offshore-Wind liegt in Teilen Europas bereits bei knapp unter 5 €ct/kWh [2]. Je nach Region prognostizieren verschiedenste Studien daher mittel- bis langfristige PtL-Produktionskosten von 0,8-1,3 €/Liter [3].

Diese Kosten sind jedoch noch nicht erreicht und liegen trotz allem über dem derzeitigen Marktpreis fossilen Rohöls. Im Unterschied zu fossilem Rohöl bedient sich die Wertschöpfungskette des PtX nicht eines Speichers, den die Natur vor Jahrmillionen auf der Erde angelegt hat und dessen Ausbeutung, Handel und Konsum deutlich unter den Wiederherstellungskosten erfolgt.

Aus diesem Grund ist es – wie bei fast allen nachhaltigen Energieformen – notwendig, regulatorische Rahmenbedingungen zu schaffen, die Kraftstoffen aus PtX-Quellen einen Platz neben den fossilen Wettbewerbsprodukten einräumen. Die Technologieentwicklung alleine kann nicht für eine Wettbewerbsfähigkeit des Erdölsubstituts e-Crude sorgen.

4 Ausblick

Verschiedene Studien belegen bereits heute, dass Klimaschutzziele nur mit Hilfe von PtX-Technologien erreicht werden können. Dies liegt u.a. daran, dass es Sektoren gibt, welche auch langfristig nicht direkt zu elektrifizieren sind. Der Flugverkehr soll hier nur als eines der vielen Beispiele genannt werden. Derzeit werden ca. 11,4 % der im Transportsektor benötigten Energie in Form von Kerosin für den Flugverkehr bereitgestellt [4]. Aufgrund der zurückzulegenden Strecken und Gewichtsbeschränkungen ist eine direkte Elektrifizierung jedoch problematisch. Man ist auf die deutlich höhere Energiedichte der chemischen Kraftstoffe angewiesen. Da Biokraftstoffe nur im begrenzten Maße zur Verfügung stehen, muss der in diesem Sektor derzeit stark anwachsende Energiebedarf durch den Einsatz von PtL gedeckt werden.

Literatur

- [1] <https://www.greentechmedia.com/articles/read/the-worlds-cheapest-solar-is-actually-wind-mexico#gs.JkWb0E8>
- [2] IEA, Cédric Philibert, Renewable Energy Division, May 2018, "Renewable Energy for Industry: Offshore Wind in Northern Europe"

- [3] Agora Verkehrswende, Agora Energiewende und Frontier Economics, Die zukünftigen Kosten strombasierter synthetischer Brennstoffe, 2018
- Tremel, Electricity-based fuels, ISBN: 978-3-319-72458-4, SpringerNature, 2018
- Ludwig Bölkow Systemtechnik, Renewables in Transport 2050, 2016
- UBA, Erarbeitung einer fachlichen Strategie zur Energieversorgung des Verkehrs bis zum Jahr 2050. 72/2016
- LUT, Techno-Economic Assessment of Power-to-Liquids (PtL) Fuels Production and Global Trading Based on Hybrid PV-Wind Power Plants, 2016
- Ludwig Bölkow Systemtechnik und Deutsche Energie-Agentur, E-Fuels – The potential of electricity-based fuels for low emission transport in the EU, 2017
- Fraunhofer IWES, Mittel- und langfristige Potenziale von PtL- und H₂-Importen aus internationalen EE-Vorzugsregionen, 2017
- [4] IEA, 2017. Sankey Diagram - World Final Consumption 2014. [Online]
Available at: <http://www.iea.org/Sankey/#?c=World&s=Final%20consumption>
[Zugriff am 23 Februar 2017]

Beyond Batteries – Electrochemical Strategies for Fuel Synthesis

Uwe Schröder, W. Sauter, M. Guschakowski, O.O. James

Abstract

This presentation reviews the latest progress in the electrochemical synthesis of liquid organic fuels, highlights the benefits over conventional Power-to-Liquid technologies and discusses research needs.

„Power-to-X“ technologies utilize electrochemically generated hydrogen for the production of liquid (Power-to-Liquid) or gaseous (Power-to-Gas) fuels. By combining the use of renewable electricity, e.g., from wind power and photovoltaics, and renewable chemical precursors, such as carbon dioxide or biogenic platform chemicals, Power-to-X technologies can contribute to the transition of the transportation sector from fossil to renewable resources. Moreover, these technologies may be exploited as a tool to store excess electricity into high-density fuels.

In their core processes, existing Power-to-X technologies are based on conventional catalytic processes, such as gasification and Fischer-Tropsch synthesis, with the actual electrochemical process solely delivering the necessary hydrogen gas (Fig. 1).

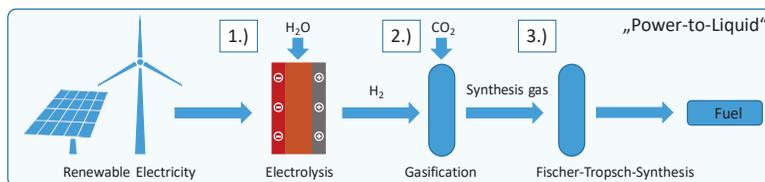


Figure 1: Schematic illustration of a Power-to-Liquid process

Beside the need for high pressure and high temperature reactor technology, these catalytic processes require well defined and generally highly constant reaction conditions, contradicting the rather fluctuating nature of renewable electricity from wind power and photovoltaics.

A comparison of the catalytic and electrochemical hydrogenation of levulinic acid (Fig. 2) illustrates, that electrochemical processes allow access to ambient temperature and pressure reaction conditions. By using electrons as immaterial reagents, chemical oxidizers or reducing agents (such as hydrogen gas) become obsolete. Furthermore, the reaction rate can be easily controlled by means of the applied current or voltage.

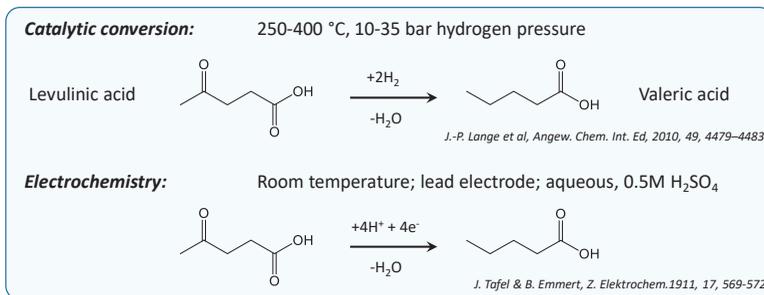


Figure 2: Comparison of the process conditions of the catalytic and electrocatalytic hydrogenation of levulinic acid

An electrochemical fuel synthesis (here denominated as ElectroFuel approach) may allow the establishment of a simplified (Fig. 3), alternative Power-to-Liquid process, suitable for the direct use of (excess) electricity from renewable resources.

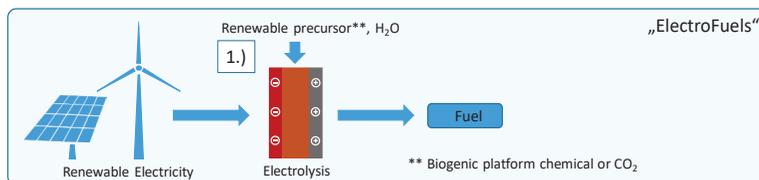


Figure 3: Schematic illustration of the ElectroFuel process

This presentation will elucidate the potential and different pathways of electrochemical fuel synthesis. It will provide an overview about biogenic precursors and major reaction types, such as electrochemical hydrogenation, hydrodeoxygenation and chain elongation. Fundamental aspects of energy efficiency, downstream processing and process continualization will be discussed.

Literature

- [1] Peter Nilges, Tatiane dos Santos, Falk Harnisch, Uwe Schröder; Electrochemistry for biofuel generation: Electrochemical conversion of levulinic acid to octane; **Energy and Environmental Science** 5 (2012) 5231-5235
- [2] Peter Nilges, Uwe Schröder; Electrochemistry for biofuel generation: Production of furans by electrocatalytic hydrogenation of furfurals; **Energy and Environmental Science** 6 (2013) 2925-2931
- [3] Tatiane R. dos Santos, Peter Nilges, Uwe Schröder; Electrochemistry for biofuel generation: Transformation of fatty acids and triglycerides to "diesel-like" olefin/ether mixture and olefins; **ChemSusChem** 8 (2015) 886-893



- [4] Tatiane R. dos Santos, Peter Nilges, Waldemar Sauter, Falk Harnisch, Uwe Schröder; Electrochemistry for generation of renewable chemicals: Electrochemical conversion of levulinic acid; **RSC Advances** 5 (2015) 26634 – 26643
- [5] Olusola O. James, Waldemar Sauter, Uwe Schröder; Electrochemistry for the Generation of Renewable Chemicals: One-Pot Electrochemical Deoxygenation of Xylose to δ -Valerolactone; **ChemSusChem** 10 (2017) 2015-2022
- [6] Waldemar Sauter, Olaf Lennart Bergmann, Uwe Schröder; Hydroxyacetone: A glycerol based platform for electrocatalytic hydrogenation and hydrodeoxygenation processes; **ChemSusChem** 10 (2017) 3105-3110 (VIP Paper)
- [7] Olusola O. James, Waldemar Sauter, Uwe Schröder; Towards selective electrochemical conversion of glycerol to 1,3-Propanediol; **RSC Advances** 8 (2018) 10818-10827

Alternative Kraftstoffe aus Fischer-Tropsch-Synthese in Kombination mit Hydroformylierung für verbrauchs- und emissionsarme Verbrennungsmotoren von heute und morgen

Bastian Lehrheuer, M. Zubel, D. Neumann, B. Heuser, K. Thenert, W. Leitner, S. Pischinger

Abstract

In the context of the Cluster of Excellence „Tailor-Made Fuels from Biomass“ at the RWTH Aachen University, innovative fuel candidates, a mixture of long-chain alcohols and alkanes, were identified as promising substitution candidates for today's fossil Diesel fuel. These fuels had already been tested in previous investigations using a single cylinder research engine. The fuel candidate $\text{FTF}_{\text{OH, max}}$ with a high oxygen content of 6 % m/m showed the highest soot reduction potential. This article describes investigations with a series production Diesel passenger car, which was tested on an emission chassis dynamometer according to the Worldwide harmonized Light vehicle Test Procedure (WLTP) without any adaption of engine hardware and calibration. The results confirm a very high soot respectively particle reduction potential for $\text{FTF}_{\text{OH, max}}$ of more than 90 % and 80 %.

1 Motivation und Stand der Technik

Aufgrund der gestiegenen Umwelt- und Klimaschutzanforderungen muss eine langfristige Defossilisierung des Energie- und des Transportsektors erfolgen. Nachhaltige Mobilitätslösungen, gekoppelt an den Energiesektor, nehmen dabei eine Schlüssel-funktion ein. Großes Potential, die CO_2 -Emissionen im Mobilitätssektor bereits kurz- und mittelfristig nachhaltig zu senken, bieten auf Basis regenerativer Energie- und Kohlenstoffquellen erzeugte flüssige Kraftstoffe, welche durch Beimischung in die bestehende Kraftstoffinfrastruktur integriert werden können. Langfristig tragen derartige Kraftstoffe dazu bei, den CO_2 -Kreislauf zu schließen, und sie weisen somit den Weg in eine CO_2 -neutrale Mobilität (siehe Bild 1). Darüber hinaus bieten die an die Anforderungen des motorischen Verbrennungsprozesses angepassten synthetischen Kraftstoffe erhebliches Reduktionspotenzial in Bezug auf die Stickoxid- und Rußpartikelemissionen, und haben so einen zusätzlichen positiven Einfluss auf die Klimabilanz und die Luftreinhaltung.

Stand der Technik im Bereich der individuellen Mobilität ist heute der mit flüssigem fossilem Kraftstoff betriebene Verbrennungsmotor. Durch zunehmende Einführung elektrifizierter Antriebsstränge wird bereits ein erster Beitrag zur Erreichung der vom Gesetzgeber geforderten CO_2 -Ziele für die Fahrzeugflotte geleistet. Für die bereits im Verkehr befindlichen Fahrzeuge ist die Nutzung eines CO_2 -neutralen Kraftstoffs allerdings die einzige Möglichkeit, kurzfristig die Treibhausgasemissionen auf Basis eines Well-to-Wheel-Ansatzes (WtW) weiter signifikant zu reduzieren.



Bild 1: Der geschlossene CO₂-Kreislauf als Motivation für synthetische Kraftstoffe

Aus der Forschung sind zahlreiche Ansätze für erneuerbaren Kraftstoff aus nachwachsenden biologischen Quellen bekannt, welche auch zum Teil auf eine strombasierte Kraftstoffherstellung übertragbar sind. Insbesondere aus den Arbeiten im Rahmen des Exzellenzclusters „Maßgeschneiderte Kraftstoffe aus Biomasse“ (Tailor-Made Fuels from Biomass: TMFB) haben sich in den letzten Jahren motorisch vielversprechende Kraftstoffe und deren Syntheseprozesse herauskristallisiert. Die Vision des Clusters ist es, ein ganzheitliches Verfahren für die Herstellung neuartiger, maßgeschneiderter Kraftstoffe für Fahrzeuganwendungen zu entwickeln. Um direkte Konkurrenz mit der Nahrungsmittelkette zu vermeiden, wird für diesen Prozess nur lignozellulosehaltiges Ausgangsmaterial berücksichtigt. Dabei wird im TMFB ein einzigartiger interdisziplinärer Ansatz verfolgt, der Forscher aus verschiedenen Fachgebieten wie Chemie, Biologie, Kinetik, Systemtechnik und Verbrennungstechnik zusammenbringt, um dieses Verfahren, das "Fuel Design", zu etablieren.

Das Fuel Design ist eine modellbasierte Beschreibung der gesamten Prozesskette von der Biomasse bis zur Brennstoffumwandlung, um optimale maßgeschneiderte Brennstoffgemische aus Biomasse zu definieren und Zusammenhänge zwischen molekularen Strukturen, verbrennungsrelevanten Brennstoffeigenschaften und realisierbaren Produktionswegen abzuleiten [1–5].

Der Fokus dieses Beitrages liegt auf der motorischen Verwendung von Kraftstoffen, die durch eine Kombination aus Fischer-Tropsch-Synthese und Hydroformylierung erzeugt werden können, und die aufgrund ihrer motorischen Anwendbarkeit kurz- bis mittelfristig, als Reinkomponente oder als Beimischung zu konventionellen Kraftstoffen einsetzbar sind. Dabei handelt es sich um Gemische aus länger-kettigen Alkoholen (C₆–C₁₁) und Alkanen, welche eine vielversprechende Alternative zu erdölbasierten Dieselmotorkraftstoffen darstellen.

Die Untersuchung von Diesel-Alkohol-Blends war bereits Gegenstand einer Vielzahl von motorischen Arbeiten. In [6] wurde die Beimischung von Methanol und Ethanol zu Dieselmotorkraftstoff mit einem Volumenanteil von bis zu 40 % in einem Einzylinderforschungsmotor untersucht. Diese Untersuchung ergab eine signifikante Steigerung der thermischen Effektivität bei jedoch erhöhten Stickoxidemissionen. Weiterhin wurden

bei reduzierter Last erhöhte HC- und CO-Emissionen beobachtet. Da eine Zumischung von kurzkettigen Alkoholen die Cetanzahl reduziert, kommt es zu einem höheren Anteil an vorgemischter Verbrennung und damit bei höheren Alkoholanteilen zur einer Verringerung der Verbrennungsstabilität [6, 7]. Die Untersuchungen von *n*-Butanol-Diesel-Blends an einem 6-Zylindermotor ergab bei konstanter Motorleistung eine Verbesserung der Schadstoffemissionen [8]. Der Einsatz von reinen kurzkettigen Alkoholen ist zwar möglich, aber durch deren Zündunwilligkeit und die damit verbundenen hohen Druckanstiegsraten während der Verbrennung in einem Dieselprozess auf niedrige Lasten beschränkt [9]. Demgegenüber konnte bereits an einem 4-Zylinder Diesel Serien-Motor gezeigt werden, dass langkettige Alkohole wie 1-Octanol diesen Beschränkungen nicht unterliegen und gleichzeitig signifikant Rußemissionen reduzieren [10]. Dabei liegen die physikalisch-chemischen Eigenschaften einer Mischung aus 20 % 1-Octanol und 80 % Dieseldieselkraftstoff nahezu innerhalb der Grenzen der Kraftstoffnorm EN590. Diese Ergebnisse zeigen das hohe Potential von den hier behandelten Mischungen aus Alkanen und C₆-C₁₁ Alkoholen als Kraftstoff bzw. Kraftstoff-Beimischung sowohl in Bezug auf eine kurzfristige Markteinführung als auch bezüglich der Reduktion des Kraftstoffverbrauchs und des Schadstoffausstoßes. Im Vergleich zu kurzkettigen Alkoholen ist zudem eine deutlich bessere Materialverträglichkeit zu erwarten, da die Korrosivität mit den höheren Kettenlängen signifikant abnimmt.

2 Kraftstoffsynthese

Die Herstellung der genannten Kraftstoffe, die aus einer Mischung von Alkanen und Alkoholen mittlerer Kettenlänge (C₆-C₁₁) bestehen, kann durch die Kopplung zweier etablierter Technologien, der Fischer-Tropsch-Synthese und der Hydroformylierung erfolgen (Bild 2).

Beide etablierten Technologien nutzen Synthesegas, ein Gemisch aus Kohlenmonoxid und Wasserstoff. Industriell wird Synthesegas üblicherweise über Pt-katalysierte partielle Oxidation von Methan, Ni-katalysierte Dampfreformierung von Methan und leichten Kohlenwasserstoffen oder durch Vergasung von schweren Kohlenwasserstoffen und Kohle als Kohlenstoffquelle hergestellt. Die Nutzung nachwachsender Rohstoffe, die nicht in Konkurrenz zur Nahrungsmittelkette stehen, zur Herstellung von Synthesegas ist ausgehend von unterschiedlichen Kohlenstoffquellen möglich. Die Herstellung kann über die Vergasung von Biomasse [11–14], die Umsetzung von Biogas in Kombination mit CO₂ über das dry-reforming (DRM) [15–17] oder die umgekehrte Wasser-Gas-Shift-Reaktion (rWGS) [18], bei der CO₂ und H₂ zu CO und H₂O umgesetzt werden, erfolgen. Die Co-Elektrolyse von CO₂ und H₂O zu Synthesegas wird derzeit ebenfalls intensiv untersucht.

Bei der Fischer-Tropsch-Synthese wird Synthesegas zur Herstellung von Kohlenwasserstoffen genutzt (Bild 3, i) [19–22]. Typische Katalysatoren basieren auf Eisen, Cobalt, Nickel und Ruthenium, wobei nur die beiden erstgenannten Metalle industriell genutzt werden. Die Kettenlängenverteilung der während der Reaktion gebildeten Kohlenwasserstoffe folgt einer Schulz-Flory-Verteilung und kann durch die Wahl der Reaktionsbedingungen beeinflusst werden. Für eine Prozesskette, bestehend aus dem Fischer-Tropsch-Verfahren und der Hydroformylierung, muss das Fischer-Tropsch-Verfahren im Gegensatz zu dem derzeit zur Produktion von kohlenwasserstoffbasier-

ten Treibstoffen genutzten Verfahren hinsichtlich seiner Produktverteilung so ausgelegt werden, dass vor allem ein hoher Anteil der C₅-C₁₀ Fraktion mit einem hohen Olefin-Anteil als Ausgangsverbindungen für die Synthese von Alkoholen über die Hydroformylierung erhalten werden.

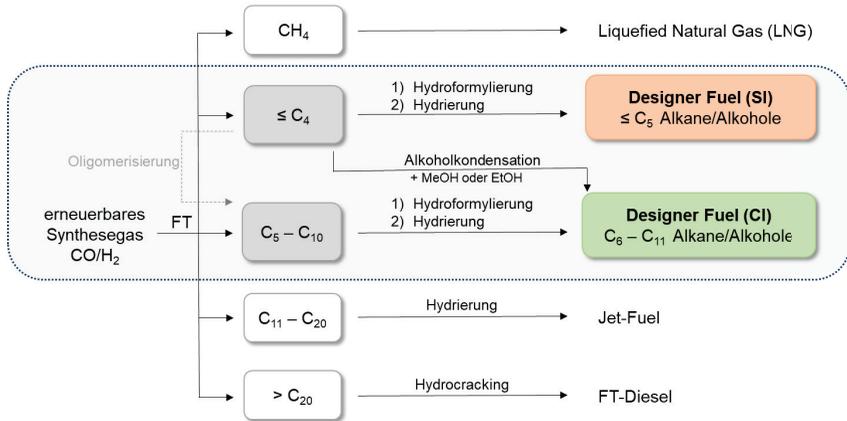


Bild 2: Mögliche Prozesskette für die Herstellung eines Kraftstoffes auf Basis von Alkoholen mittlerer Kettenlänge ausgehend von Synthesegas.



(ii)

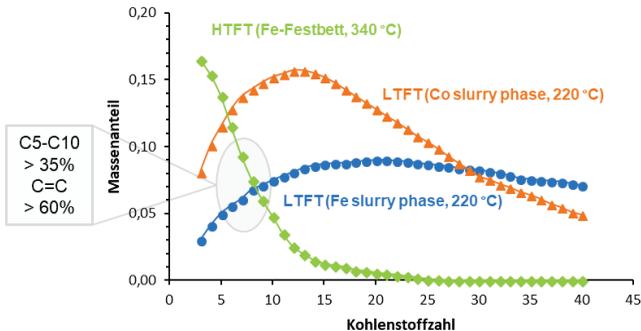


Bild 3: (i) Allgemeine Reaktionsgleichung der Fischer-Tropsch-Synthese; (ii) Produktverteilung der Fischer-Tropsch-Synthese bei unterschiedlichen Bedingungen [20]

Ein wichtiger Parameter zur Beeinflussung der Produktverteilung ist die Temperatur. Im Allgemeinen wird zwischen dem Tieftemperaturverfahren („Low Temperature Fischer Tropsch“ – LTFT) und dem Hochtemperaturverfahren („High Temperature Fischer Tropsch“ – HTFT) unterschieden (vgl. Bild 3, ii). [20, 22] Beim Tieftemperaturverfahren, für welches industriell sowohl Eisen- als auch Cobalt-Katalysatoren genutzt

werden, werden bei Temperaturen zwischen 200 und 250 °C vor allem langkettige Paraffine produziert (Wachse), welche über Crackprozesse zu Dieselkraftstoff verarbeitet werden können [20,23]. Hingegen werden beim Hochtemperaturverfahren, welches industriell ausschließlich Eisen-katalysiert durchgeführt wird, vorwiegend kurzkettige Olefine in einem Temperaturbereich von 300 – 350 °C gebildet [20,24]. Das HTFT-Verfahren ist dementsprechend aufgrund seiner Produktverteilung für die hier angestrebte Kraftstoffsynthese geeigneter. Gegenstand aktueller Forschung im Bereich der HTFT ist insbesondere die Entwicklung bzw. Weiterentwicklung der Katalysatoren für eine Steigerung der Stabilität, Selektivität und Aktivität sowie das Prozessdesign [25–27].

Die aus der Fischer-Tropsch-Synthese in der C₅-C₁₀-Fraktion erhaltenen Olefine sollen in der angestrebten Prozesskette mit Synthesegas katalytisch durch eine Hydroformylierung zu Aldehyden bzw. Alkoholen umgesetzt werden (Bild 4) [28–30]. Die Reaktion führt, sofern nicht Ethylen als Substrat verwendet wird, zu einer Mischung von isomeren Produkten (*n*-/*iso*-Aldehyden). Zudem können durch Doppelbindungsisomerisierungen des Olefins vor der Hydroformylierung verschiedene verzweigte Aldehyde gebildet werden. Das Verhältnis der Isomere (Regioselektivität) ist neben der Reaktionsrate ein wichtiger Parameter der Hydroformylierung, der durch die Wahl des Katalysators beeinflusst werden kann.

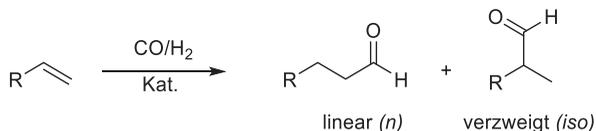


Bild 4: Allgemeine Reaktionsgleichung der Hydroformylierung.

Aufgrund ihrer hervorragenden Aktivität werden industriell ausschließlich homogene Rhodium- und Cobalt-Katalysatoren für die Hydroformylierung eingesetzt [28–30]. Typische Reaktionsbedingungen für die Cobalt-katalysierte Hydroformylierung sind Temperaturen von 120 – 190 °C und Synthesegasdrücke von 4 – 30 MPa. Aufgrund der guten Hydrierungsaktivität der Cobalt-Katalysatoren können die entstandenen Aldehyde direkt zu Alkoholen umgesetzt werden. Im direkten Vergleich zu Cobalt-Katalysatoren können Rhodium-Katalysatoren eine bis zu 1000-fach höhere Aktivität aufweisen und werden bei deutlich niedrigeren Temperaturen (85 – 130 °C) und Drücken (1,8 – 6 MPa) eingesetzt. Die erhaltenen Aldehyde können in einem zweiten Schritt zu den entsprechenden Alkoholen hydriert werden. Gegenüber Cobalt hat Rhodium allerdings einen deutlich höheren Preis. Die Wahl des Reaktions- und Katalysatorsystems hat einen direkten Einfluss auf die Produktzusammensetzung hinsichtlich der Chemo- und Regioselektivität [25,28].

Zusammenfassend wird eine Prozesskette angestrebt, die zwei etablierte Technologien, das Fischer-Tropsch-Verfahren und die Hydroformylierung, verknüpft. Herausforderungen ergeben sich dementsprechend im Bereich der Katalysator-Forschung sowie in der Reaktions- und Prozesstechnik. Bei der Fischer-Tropsch-Synthese ist vor allem die Wahl des Katalysators und der Prozessparameter entscheidend, um gezielt die gewünschte Produktverteilung ermöglichen zu können. Im Bereich der Hydroformylierung bestehen Herausforderungen im Bereich der Prozessintegration sowie

der Selektivität für eine ideale Zusammensetzung der Produktmischung (Alkane, *n*- und *iso*-Alkohole). Welches Verhältnis erstrebenswert ist, ist abhängig von den Verbrennungseigenschaften des entstehenden Gemisches. Die im Folgenden diskutierten Fahrzeug-Untersuchungen stellen einen ersten Schritt in der Charakterisierung möglicher Kraftstoffgemische dar und dienen so als Vorarbeit für die detaillierte Definition der Kraftstoffsynthese.

2.1 Untersucher Kraftstoff

Basierend auf vorherigen Untersuchungen an einem Einzylinder-Forschungsmotor mit zwei potenziellen Kraftstoffzusammensetzungen, welche die Extrema des möglichen Alkan/Alkohol-Spektrums abdecken, wurde für die im Folgenden diskutierten Fahrzeug-Untersuchungen die Kraftstoffspezifikation mit einem maximalen Alkoholanteil gewählt (Fischer Tropsch Fuel mit maximalem Alkoholanteil: $FTF_{OH, max}$). Dieser Kraftstoff zeichnete sich in den Einzylinder-Untersuchungen durch ein besonders hohes Rußminderungspotential von bis zu 80 % je nach Betriebspunkt und Abgasrückführ-rate (AGR) aus [31].

Tabelle 1: Zusammensetzung und physikalische Eigenschaften des alkoholreichen Kraftstoffs $FTF_{OH, max}$ [32–34]

Stoff	Summenformel	Massen- anteil / -	Dichte @25°C / kg/m ³	Unterer Heizwert / MJ/kg	c/h/o/ -	Kin, Vis- kosität @ 25°C / mm ² /s	Siedepunkt / °C	Cetanzahl
Heptan	C ₇ H ₁₆	0,35	682	44,2	0,84/0,16/0	0,58	98,4	52,5
Oktan	C ₈ H ₁₈	0,2	699	44,08	0,84/0,16/0	0,73	125,8	63,8
Nonan	C ₉ H ₂₀	0,05	715	43,98	0,84/0,16/0	0,94	150,8	72
Hexanol	C ₆ H ₁₄ O	0,17	816	35,88	0,70/0,14/0,16	5,63	157,4	23,3
Heptanol	C ₇ H ₁₆ O	0,1	817	36,73	0,72/0,14/0,14	7,08	176,3	29,5
Oktanol	C ₈ H ₁₈ O	0,05	823	37,46	0,74/0,14/0,12	9,1	195,2	39,1
2-Hexanol	C ₆ H ₁₄ O	0,03	810	35,71	0,70/0,14/0,16	5,21	139,9	n.a.
2-Heptanol	C ₇ H ₁₆ O	0,03	814	36,6	0,72/0,14/0,14	4,86	159,2	23,7
2-Oktanol	C ₈ H ₁₈ O	0,02	817	37,39	0,74/0,14/0,12	1	179,8	30,9
$FTF_{OH, max}$	C _{7,47} H _{16,34} O _{0,4}	1	741	41,05	0,79/0,15/0,06	2,84	98,4-195,2	45,4
Diesel	C _{13,8} H _{25,8} O _{0,08}	1	823	42,82	0,86/0,13/0,01	3	172,0-360,8	53

Tabelle 1 zeigt die Zusammensetzung sowie die wichtigsten, aus [32] entnommenen, physikalischen Daten dieses Kraftstoffs. Der untere Heizwert wurde mittels der Standardbildungsenthalpie [33] berechnet. Die Berechnung der Stoffwerte erfolgte vereinfacht unter Annahme eines linearen Mischungsgesetzes. Durch den hohen Anteil an Alkoholen (40 % m/m) weist $FTF_{OH, max}$ einen hohen Sauerstoffanteil von 6 % m/m auf. Des Weiteren ist der Siedebereich mit einem Siedende bei 179,8 °C weit unterhalb

dem von konventionellem Dieselmotorkraftstoff, was eine hohe Volatilität des Kraftstoffs und eine damit einhergehende bessere Gemischbildung vermuten lässt.

3 Fahrzeug-Untersuchungen auf dem Rollenprüfstand

Mit dem oben beschriebenen Kraftstoffgemisch wurde ein konventioneller Diesel-Pkw betankt und auf einem Rollenprüfstand Emissionstests unterzogen.

3.1 Versuchsfahrzeug und Randbedingungen

Bei dem Versuchsfahrzeug handelt es sich um eine 2014er Mercedes A-Klasse 220 CDI (siehe Bild 5). Der 4-Zylinder Diesel Serien-Motor (OM651) mit einem Hubraum von 2143 cm³ wurde, abgesehen von der Installation einer Abgasentnahmestelle vor der Abgasnachbehandlung zur Messung der Motor-Rohemissionen, nicht weiter modifiziert. Insbesondere die EURO VI Kalibrierung für den Neuen Europäischen Fahrzyklus (NEFZ) wurde unverändert übernommen. Die Messergebnisse zeigen somit den reinen Kraftstoffeinfluss ohne eine auf den Kraftstoff optimierte Betriebsstrategie. Der Motor verfügt über eine Hoch- und Niederdruck-Abgasrückführung sowie einen Dieseloxydationskatalysator (DOC) und einen Partikelfilter.



Bild 5: Versuchsfahrzeug Mercedes A-Klasse 220 CDI

Die Abgase für die Messung der Schadstoffemissionen, Stickoxide (NO_x), Kohlenwasserstoffe (HC), Kohlenmonoxid (CO) und Ruß, werden sowohl vor Abgasnachbehandlung (Rohemissionen) als auch nach Auspuffendrohr (Abgasemissionen) entnommen. Bei der Rohemissionsmessung handelt es sich um eine Teilstromentnahme, welche nach Messung zurückgeführt wird. Im Falle der Abgasemissionen wird ein sogenanntes Constant Volume Sampling durchgeführt. Die CO₂-Emissionen sowie Partikelanzahl werden ausschließlich nach Endrohr bestimmt.

Für die Untersuchungen wurde – entgegen der Fahrzeug-Kalibrierung – der seit 1. September 2017 in der Europäischen Union geltende *Worldwide harmonized Light vehicles Test Cycle (WLTC)* gewählt. Durch das Leistungsgewicht des Fahrzeugs ergibt sich dabei das in Bild 6 dargestellte Geschwindigkeitsprofil für die Fahrzeugklasse 3.

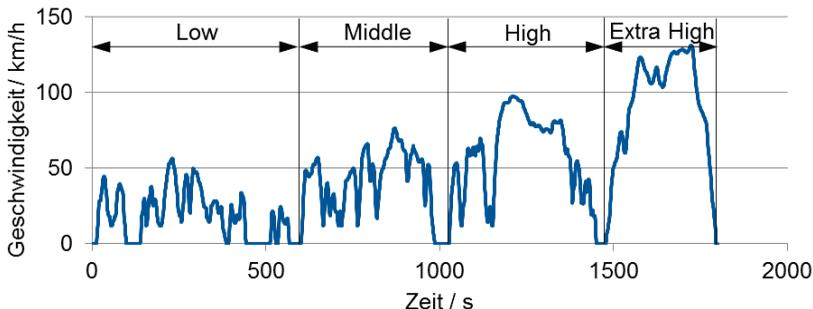


Bild 6: Geschwindigkeitsprofil im Worldwide harmonized Light vehicles Test Cycle (WLTC) Klasse 3

Der WLTC zeichnet sich im Vergleich zu dem NEFZ durch eine höhere mittlere und maximale Antriebsleistung aus, weshalb der Motor mit einem vergleichsweise großen Anteil in höheren Lastbereichen betrieben wird. Dies ist bei der Evaluierung der Messergebnisse zu berücksichtigen.

3.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse der Emissionsmessungen auf dem Rollenprüfstand sind in Bild 7 jeweils als Roh- (links) und Abgasemissionen (rechts) dargestellt. Die eingezeichneten Grenzwerte entsprechen denen der aktuell gültigen Euro VI Gesetzgebung, wobei im Falle der Kohlenwasserstoffemissionen (HC) zu berücksichtigen ist, dass diese für Dieselmotoren zusammen mit den Stickoxidemissionen (NO_x) auf in Summe 215 mg/km limitiert sind. Daraus ergeben sich in der gezeigten Messung unterschiedliche Grenzwerte für die HC-Emissionen.

Deutlich zu erkennen sind die stark reduzierten Ruß-Rohemissionen bei Verwendung des FTF_{OH, max} (-94 %). Dies ist insbesondere auf den hohen im Kraftstoff gebundenen Sauerstoffanteil von 6 % m/m, die Aromatenfreiheit und die hohe Volatilität des Kraftstoffes zurückzuführen. Auf Grund des Partikelfilters sind im Abgas nach Endrohr nahezu keine Rußemissionen messbar. Die geringen Rußrohmissionen ermöglichen aber eine Verlängerung der Regenerationsintervalle des Filters, wodurch die CO₂-Emissionen weiter gesenkt werden können. Auch die Partikelanzahl kann mithilfe des FTF_{OH, max} um über 80 % reduziert werden.

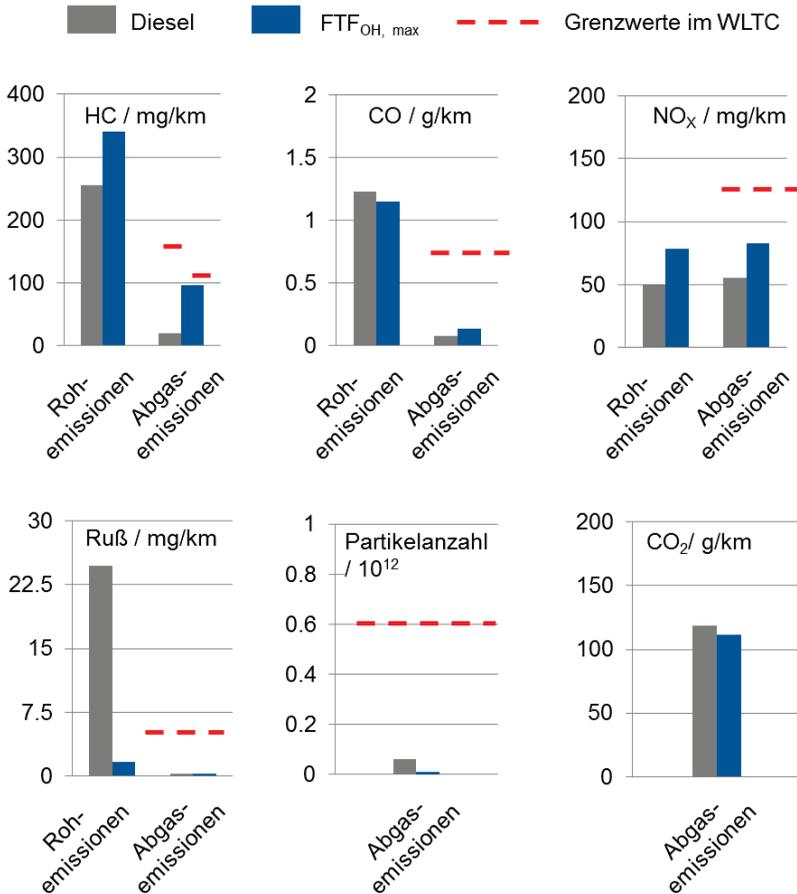


Bild 7: Roh- und Abgasemissionen des Serienfahrzeugs im WLTC mit den Euro VI Grenzwerten

Da Alkohole im Vergleich zu Dieseldieselkraftstoff eine eher geringere Zündwilligkeit aufweisen und die restlichen Alkane eine ähnliche Cetanzahl wie Diesel aufweisen, besitzt FTF_{OH, max} eine geringere Zündwilligkeit als Diesel. Daher weisen die HC-Emissionen für FTF_{OH, max} eine deutliche Erhöhung sowohl in den Rohemissionen als auch im Abgas auf, wobei aber die vorgegebenen Grenzwerte eingehalten werden. Die CO-Emissionen dagegen befinden sich auf einem vergleichbaren Niveau. Die absolut gesehen konstante Erhöhung der HC-Emissionen vor und nach Abgasnachbehandlung lässt darauf schließen, dass es sich um HC-Emissionen aus einer im Vergleich zum Dieseldieselkraftstoff geringeren Konvertierungsrate der Kohlenwasserstoffe in der Kaltstart- und Warmfahrphase handelt, wenn der Katalysator noch nicht auf Betriebstemperatur

ist. Der hoch-volatile Kraftstoff begünstigt ein Eindringen von Kraftstoffdampf in Brennraumzonen, wo Dieseldampf gegebenfalls nicht hinreicht. Zudem steht wegen der geringeren Zündwilligkeit mehr Zeit zum Eindringen zur Verfügung. Diese Nachteile könnten durch eine angepasste Motorkalibrierung oder einen angepassten Katalysator ausgeglichen werden.

Die NO_x -Emissionen steigen mit $\text{FTF}_{\text{OH, max}}$ um über 50 % im Vergleich zum Diesel an. Aber auch hier werden die geltenden Grenzwerte nicht überschritten. Dabei ist zu berücksichtigen, dass das Fahrzeug lediglich mit einem DOC ausgestattet ist und keine Anpassung der Motorkalibrierung an den Kraftstoff vorgenommen wurde. Auf Grund der signifikant reduzierten Rußemissionen liegt hier insbesondere in einer Optimierung der Abgasrückföhrerate erhebliches Reduktionspotential. Ebenso könnte die Einspritzstrategie angepasst werden, um den Anteil vorgemischter Verbrennung zu reduzieren.

Die Reduktion der CO_2 -Emissionen um 7,5 g/km liegt im Wesentlichen in dem günstigeren Kohlenstoff- zu Wasserstoffverhältnis (C/H-Verhältnis) des $\text{FTF}_{\text{OH, max}}$ von 0,46 im Vergleich zum Diesel mit 0,53 begründet. Weiteres Reduktionspotential der Tank-to-Wheel CO_2 -Emissionen insbesondere im realen Fahrbetrieb liegt in der oben genannten Verlängerung der Regenerationsintervalle des Partikelfilters.

4 Zusammenfassung und Ausblick

Anhand der durchgeföhrten Untersuchungen mit einem unveränderten Serienfahrzeug auf dem Rollenprüfstand konnte gezeigt werden, dass der neue Kraftstoff, welcher mittels Fischer-Tropsch-Synthese in Kombination mit Hydroformylierung nachhaltig erzeugt werden kann, große Potentiale zur Reduzierung der Ruß- beziehungsweise Partikelemissionen aufweist. Das Potential beschränkt sich dabei nicht nur auf zukünftige, an den Kraftstoff adaptierte Motoren sondern lässt sich bereits in aktuellen Motorgenerationen nutzen.

Die erfolgreiche interdisziplinäre Zusammenarbeit zwischen Forschern aus den Bereichen der technischen Chemie, der Prozesstechnik und der Motorentechnik unterstreicht die Signifikanz einer ganzheitlichen Betrachtung der Energie-, und Synthesepfade mit Mobilität und Transport, um langfristig eine Defossilisierung der Gesellschaft zu erreichen.

Danksagung

Diese Arbeit ist im Rahmen der Exzellenzclusters 236 „Maßgeschneiderte Kraftstoffe aus Biomasse“ entstanden, das durch die Exzellenzinitiative des Bundes und der Länder zur Förderung von Wissenschaft und Forschung an deutschen Hochschulen gefördert wird.

Literatur

- [1] DAHMEN, Manuel ; HECHINGER, Manuel ; VICTORIA VILLEDA, Juan ; MARQUARDT, Wolfgang: *Towards Model-Based Identification of Biofuels for Compression Ignition Engines*. In: *SAE International Journal of Fuels and Lubricants* 5 (2012), Nr. 3, S. 990–1003
- [2] HECHINGER, Manuel: *Model based identification of promising biofuel candidates for spark ignited engines*; *Als Ms. gedr.* Düsseldorf. URL <http://publications.rwth-aachen.de/record/444835>
- [3] HOPPE, Fabian ; HEUSER, Benedikt ; THEWES, Matthias ; KREMER, Florian ; PISCHINGER, Stefan ; DAHMEN, Manuel ; HECHINGER, Manuel ; MARQUARDT, Wolfgang: *Tailor-made fuels for future engine concepts*. In: *International Journal of Engine Research* 17 (2016), Nr. 1, S. 16–27
- [4] JÄGER, Gernot ; BÜCHS, Jochen: *Biocatalytic conversion of lignocellulose to platform chemicals*. In: *Biotechnology journal* 7 (2012), Nr. 9, S. 1122–1136
- [5] MARQUARDT, Wolfgang ; HARWARDT, Andreas ; HECHINGER, Manuel ; KRAEMER, Korbinian ; VIELL, Joern ; VOLL, Anna: *The biorenewables opportunity - toward next generation process and product systems*. In: *AIChE Journal* 60 (2010), n/a-n/a
- [6] JAMROZIK, Arkadiusz: *The effect of the alcohol content in the fuel mixture on the performance and emissions of a direct injection diesel engine fueled with diesel-methanol and diesel-ethanol blends*. In: *Energy Conversion and Management* 148 (2017), S. 461–476
- [7] TAGHIZADEH-ALISARAEI, Ahmad ; REZAEI-ASL, Abbas: *The effect of added ethanol to diesel fuel on performance, vibration, combustion and knocking of a CI engine*. In: *Fuel : the science and technology of fuel and energy* 185 (2016) (2016), S. 718–733. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.fuel.2016.08.041>
- [8] NABI, Md Nurun ; ZARE, Ali ; HOSSAIN, Farhad M. ; BODISCO, Timothy A. ; RISTOVSKI, Zoran D. ; BROWN, Richard J.: *A parametric study on engine performance and emissions with neat diesel and diesel-butanol blends in the 13-Mode European Stationary Cycle*. In: *Energy Conversion and Management* 148 (2017), S. 251–259
- [9] HAN, Xiaoye ; YANG, Zhenyi ; WANG, Meiping ; TJONG, Jimi ; ZHENG, Ming: *Clean combustion of n-butanol as a next generation biofuel for diesel engines*. In: *Applied Energy* 198 (2017), S. 347–359
- [10] ZUBEL, Marius ; HEUSER, Benedikt ; PISCHINGER, Stefan: *1-Oktanol Maßgeschneiderter Kraftstoff für geringe Rußemissionen*. In: *MTZ - Motortechnische Zeitschrift* 78 (2017), Nr. 3, S. 62–67
- [11] MOLINO, Antonio ; CHIANESE, Simeone ; MUSMARRA, Dino: *Biomass gasification technology : The state of the art overview*. In: *Journal of Energy Chemistry* 25 (2016), Nr. 1, S. 10–25
- [12] AIL, Snehash Shivananda ; DASAPPA, S.: *Biomass to liquid transportation fuel via Fischer Tropsch synthesis – Technology review and current scenario*. In: *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 58 (2016), S. 267–286. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1364032115015269>



- [13] [HTTPS://WWW.BIOLIQ.DE/](https://www.bioliq.de/): *Bioliq* – Überprüfungsdatum 2018-04-05
- [14] FARZAD, Somayah ; MANDEGARI, Mohsen Ali ; GÖRGENS, Johann F.: *A critical review on biomass gasification, co-gasification, and their environmental assessments*. In: *Biofuel Research Journal* 3 (2016), Nr. 4, S. 483–495. URL http://www.biofueljournal.com/article_32132.html
- [15] KAWI, Sibudjing ; KATHIRASER, Yasotha ; NI, Jun ; OEMAR, Usman ; LI, Ziwei ; SAW, Eng Toon: *Progress in Synthesis of Highly Active and Stable Nickel-Based Catalysts for Carbon Dioxide Reforming of Methane*. In: *ChemSusChem* 8 (2015), Nr. 21, S. 3556–3575
- [16] MURALEEDHARAN NAIR, Mahesh ; KALIAGUINE, Serge: *Structured catalysts for dry reforming of methane*. In: *New Journal of Chemistry* 40 (2016), Nr. 5, S. 4049–4060
- [17] MORTENSEN, Peter Mølgaard ; DYBKJÆR, Ib: *Industrial scale experience on steam reforming of CO₂-rich gas*. In: *Applied Catalysis A: General* 495 (2015), S. 141–151
- [18] DAZA, Yolanda A. ; KUHN, John N.: *CO₂ conversion by reverse water gas shift catalysis : Comparison of catalysts, mechanisms and their consequences for CO₂ conversion to liquid fuels*. In: *RSC Adv* 6 (2016), Nr. 55, S. 49675–49691. URL <http://dx.doi.org/10.1039/C6RA05414E>
- [19] JAHANGIRI, Hessam ; BENNETT, James ; MAHJOUBI, Parvin ; WILSON, Karen ; GU, Sai: *A review of advanced catalyst development for Fischer-Tropsch synthesis of hydrocarbons from biomass derived syn-gas*. In: *Catal. Sci. Technol.* 4 (2014), Nr. 8, S. 2210–2229. URL <http://dx.doi.org/10.1039/C4CY00327F>
- [20] SPIVEY, James J. ; KLERK, Arno de ; FURIMSKY, Edward: *Catalysis in the Refining of Fischer-Tropsch Syncrude* : The Royal Society of Chemistry, 2010 (RSC Catalysis Series)
- [21] DRY, Mark E.: *The Fischer-Tropsch process : 1950–2000*. In: *Catalysis Today* 71 (2002), Nr. 3, S. 227–241. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0920586101004539>
- [22] LECKEL, Dieter: *Diesel Production from Fischer-Tropsch: The Past, the Present, and New Concepts*. In: *Energy & Fuels* 23 (2009), Nr. 5, S. 2342–2358
- [23] ESPINOZA, R. L. ; STEYNBERG, A. P. ; JAGER, B. ; VOSLOO, A. C.: *Low temperature Fischer-Tropsch synthesis from a Sasol perspective*. In: *Applied Catalysis A: General* 186 (1999), Nr. 1, S. 13–26. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0926860X99001611>
- [24] STEYNBERG, A. P. ; ESPINOZA, R. L. ; JAGER, B. ; VOSLOO, A. C.: *High temperature Fischer-Tropsch synthesis in commercial practice*. In: *Applied Catalysis A: General* 186 (1999), 1-2, S. 41–54
- [25] CHEW, Ly May ; XIA, Wei ; DÜDDER, Hendrik ; WEIDE, Philipp ; RULAND, Holger ; MUHLER, Martin: *On the role of the stability of functional groups in multi-walled carbon nanotubes applied as support in iron-based high-temperature Fischer-Tropsch synthesis*. In: *Catalysis Today* 270 (2016), S. 85–92. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0920586115005970>
- [26] HERZ, Gregor ; REICHEL, Erik ; JAHN, M.: *Design and evaluation of a Fischer-Tropsch process for the production of waxes from biogas*. In: *Energy* 132 (2017),



- S. 370–381. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0360544217308587>
- [27] SCHULTE, Hendrik J. ; GRAF, Barbara ; XIA, Wei ; MUHLER, Martin: *Nitrogen- and Oxygen-Functionalized Multiwalled Carbon Nanotubes Used as Support in Iron-Catalyzed, High-Temperature Fischer-Tropsch Synthesis*. In: *ChemCatChem* 4 (2012), Nr. 3, S. 350–355
- [28] BÖRNER, Arminand ; FRANKE, Robert: *Hydroformylation*. Weinheim, Germany : Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2016
- [29] CORNILS, Boy ; BÖRNER, Armin ; FRANKE, Robert ; ZHANG, Baoxin ; WIEBUS, Ernst ; SCHMID, Klaus: *Hydroformylation*. In: *Applied Homogeneous Catalysis with Organometallic Compounds* : Wiley-Blackwell, 2017, S. 23–90
- [30] FRANKE, Robert ; SELENT, Detlef ; BÖRNER, Armin: *Applied Hydroformylation*. In: *Chemical Reviews* 112 (2012), Nr. 11, S. 5675–5732. URL <https://doi.org/10.1021/cr3001803>
- [31] NEUMANN, Daniel ; PISCHINGER, Stefan ; ZUBEL, Marius ; HEUSER, Benedikt ; THENERT, Katharina Maria ; LEITNER, Walter ; SCHÖNEN, Markus ; SCHAUB, Joschka ; JÖRG, Christian: *Power-to-Liquids – Kompensation variierender E-Fuel Zusammensetzungen mittels Digital Rate Shaping*. In: *39. Internationales Wiener Motorensymposium*. Düsseldorf : VDI-Verlag, 2018, S. 230–258
- [32] YAWS, Carl L.: *Thermophysical properties of chemicals and hydrocarbons*. Norwich, NY : William Andrew, 2009
- [33] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY NIST: *Chemistry WebBook*. URL <http://webbook.nist.gov/chemistry/> – Überprüfungsdatum 2018-01-17
- [34] YANOWITZ, Janet ; RATCLIFF, Matthew A. ; MCCORMICK, Robert L. ; TAYLOR, J. D. ; MURPHY, M. J.: *Compendium of Experimental Cetane Numbers*, 2017

OME – ein Kraftstoff für den Dieselmotor der Zukunft?

Christian Beidl, M. Münz, A. Mokros

Abstract

The European Union's steadily tightening of CO₂ limits provide for a total elimination of greenhouse gas emissions from the transport sector by 2050. Furthermore, there is a need for action to improve air quality, especially in urban areas. Technologies for low pollutant emissions are basically present, but still have to be established in the market. Thus, the reduction of CO₂ emissions remains the main task of the powertrain development. These challenges call for the research and development of alternative propulsion concepts and technologies to ensure climate-friendly and low-emission mobility in the future.

The use of synthetic, CO₂-neutral fuels is one way to ensure a climate-neutral and low-emission transport in the future. OME has repeatedly proven to be an excellent alternative to conventional diesel fuel. The potential could already be demonstrated on the basis of various experimental setups on the engine testbeds as well as with the research vehicle at the Institute of Internal Combustion Engines and Powertrain Systems.

In this article, various paths to possible market introduction scenarios for OME are presented and discussed, as well as demonstrated by appropriate experimental investigations of the institute.

1 Einleitung

Die stetig strenger werdenden CO₂-Grenzwerte der Europäischen Union sehen bis zum Jahr 2050 eine vollständige Eliminierung der Treibhausgasemissionen für den Transportsektor vor. Weiterhin besteht Handlungsbedarf zur Verbesserung der Luftqualität vor allem in Ballungsgebieten. Technologien für niedrige Schadstoffemissionen sind grundsätzlich vorhanden, müssen jedoch noch im Markt etabliert werden. So bleibt die Reduzierung der CO₂-Emissionen die Hauptaufgabe der Antriebsentwicklung. Diese Herausforderungen verlangen die Erforschung und Weiterentwicklung alternativer Antriebskonzepte und -technologien, um eine klimafreundliche und schadstoffarme Mobilität in Zukunft sicherzustellen.

Eine vielversprechende Möglichkeit diese Herausforderung zu bewältigen ist die Erforschung von synthetischen Kraftstoffen und deren Einsatz an konventionellen Antrieben. Ein Vertreter dieser Stoffklasse ist das Oxygenat Oxymethylenether (OME). OME kann aus CO₂ und Strom hergestellt werden. Unter der Voraussetzung, dass der Strom regenerativ bereitgestellt wird, ist so bilanziell ein neutraler CO₂-Kreislauf möglich. Auf diesem Wege werden CO₂-Emissionen effektiv reduziert und die Abhängigkeit von fossilen Ressourcen, wie bspw. Rohöl, beseitigt. OME (Strukturformel CH₃-O-(CH₂-O)_n-CH₃) kann in verschiedenen molekularen Kettenlängen hergestellt werden. Im Molekül ist Sauerstoff gebunden und es verfügt über keine direkten Kohlenstoffbindungen.

Diese Eigenschaften ermöglichen die rußfreie Verbrennung von OME im Verbrennungsmotor, wie es bereits in einer Vielzahl von Publikationen nachgewiesen wurde [1–6]. Damit ist der vom konventionellen Dieseldieselkraftstoff bekannte Zielkonflikt zwischen niedrigen Stickoxid- und niedrigen Partikelemissionen bereits im Rohabgas vor der Abgasnachbehandlung eliminiert.

Die grundsätzliche Eignung von OME zur Verbrennung im konventionellen Verbrennungsmotor wurde bereits demonstriert und sichergestellt. Verschiedene Untersuchungen zeigen ein großes Potential für den Einsatz von OME am Dieselmotor. Dennoch ist weiterhin großer Forschungsbedarf gegeben.

Mögliche Einführungsszenarien, die zu erwartende Produktionskapazität sowie notwendige Änderungen an Motoren und Fahrzeugen geben die Entwicklungsrichtung sowie die erforderlichen Entwicklungsaufwände vor.

2 Kraftstoffe

In Tabelle 1 sind verschiedene physikalische Stoffeigenschaften von konventionellem Dieseldieselkraftstoff (mit und ohne FAME-Anteil), OME_{1b} und OME₃₋₅ sowie der für Dieseldieselkraftstoff gültigen Norm DIN EN 590 gegenübergestellt.

Tabelle 1: Vergleich von Kraftstoffeigenschaften

Parameter	Einheit	DIN EN 590	Diesel B0 / B7	OME _{1b}	OME ₃₋₅
Unterer Heizwert	MJ/kg	-	42.7 / 42.56	22.5 * / 23.23 **	19.4
Dichte bei 15 °C	kg/m ³	820 - 845	830 / 835	873	1046
Siedepunkt	°C	95 % bei 360	170-370	42	150-260
Cetan-Zahl	-	min. 51	56.1 / 51.3	50	72 ****
HFRR	µm	max. 460	306 / 202	278	409
Kinematische Viskosität	mm ² /s	2 - 4,5 (40 °C)	2.55 / 2.63 (40 °C)	0.71 (20 °C)	0.957 (40 °C)
O ₂ -Gehalt	M.-%	-	0 / 0.8	42.1	47.9
FAME	Vol.-%	max. 7	0 / bis 7	-	-
Schwefel	ppm	max. 10	< 10	-	-
GHS-Gefahren ***	-	-			

* [7, 8] / ** [9, 10] / *** [11] / **** [12]

Die genannten Kraftstoffe wurden alle intensiv am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe der TU Darmstadt untersucht. Die größte Auffälligkeit ist der geringere Heizwert der OME-Moleküle aufgrund des eingelagerten Sauerstoffs. OME_{1b} ist additiviert, um die Cetanzahl und die Schmierfähigkeit auf ein zu konventionellem Dieseldieselkraftstoff vergleichbares Niveau anzuheben. Die niedrige Siedetemperatur von OME_{1b} stellt jedoch eine Herausforderung bezüglich der Handhabung dar. Erste Untersuchungen mit OME_{1b} haben bereits vielversprechende Ergebnisse generiert. Aktuelle Untersuchungen werden überwiegend mit höhermolekularen OMEs, hier ein Gemisch aus OME₃, OME₄ und OME₅, durchgeführt. OME₃₋₅ weist zu konvention-

nellem Dieselkraftstoff vergleichbare Eigenschaften auf. Für die Mischung höhermolekularer OMEs wird zurzeit eine Vornorm für Forschungszwecke erarbeitet, um einen vergleichbaren Standard sicherzustellen.

Der Einsatz sowie die generierten Ergebnisse von OME₃₋₅ am Verbrennungsmotor sind bisher sehr vielversprechend. Dennoch müssen Themen wie beispielsweise die Materialverträglichkeit von Polymeren, Kunststoffen und Metallen für eine flächendeckende Anwendung in der Flotte sichergestellt werden.

3 Mögliche Markteinführungsszenarien

In der aktuellen Forschungslandschaft werden verschiedene Schwerpunkte und Stoßrichtungen bei der Untersuchung von OME im Verbrennungsmotor gewählt. Diese sind durch unterschiedliche Ansichten über mögliche Einführungsszenarien in den Markt, die erwartete Entwicklung der Produktionskapazität und die notwendigen Änderungen an Motoren und Fahrzeugen motiviert. In Abbildung 9 wird ein Überblick über verschiedene Markteinführungsszenarien von OME gegeben. Grundsätzlich wird zwischen der Einführung von reinem OME als neuer Kraftstoff und der Beimischung zu konventionellem Diesel als Blend unterschieden. Im Überblick wird deutlich, dass dieser Unterscheidung verschiedene Anwendungsfelder sowie Zielsetzungen zugrunde liegen.

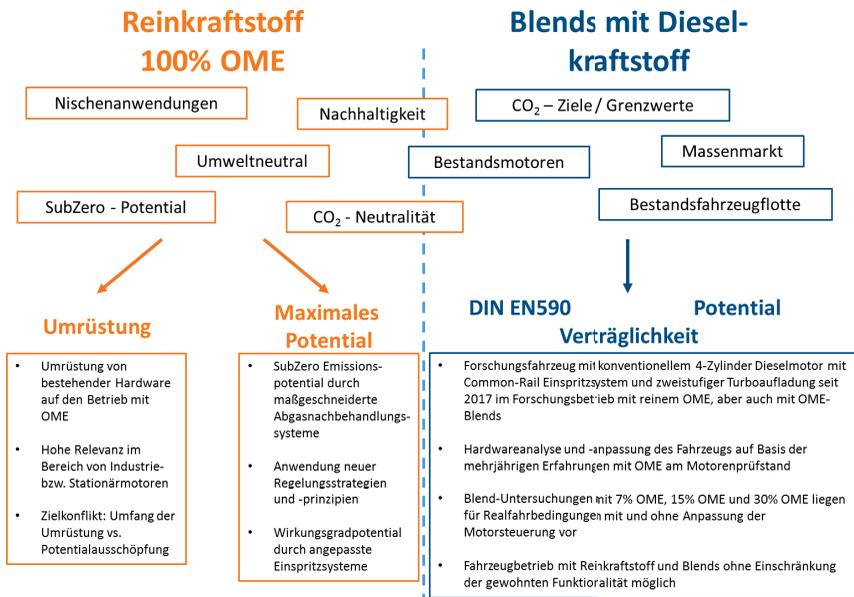


Abbildung 9: Übersicht über mögliche Markteinführungsszenarien.

Für den Einsatz von reinem OME im Verbrennungsmotor existieren zwei Ansätze. Zum einen kann ein bestehender Motor zum Betrieb mit OME umgerüstet werden. Zum anderen kann ein völlig neues Motorenkonzept dezidiert für den Betrieb mit reinem

OME ausgelegt und entwickelt werden. Die Haupttreiber der Reinkraftstoffanwendung sind eine nachhaltige und umweltneutrale Mobilität mit einem neutralen CO₂-Kreislauf sowie niedrigsten Schadstoffemissionen. Um eine Einführung von OME als Reinkraftstoff zu ermöglichen, muss der Kraftstoff zunächst genormt werden. In Tabelle 1 ist zu erkennen, dass einige physikalische Eigenschaften von OME nicht der für Dieselmotoren geltenden DIN EN 590 entsprechen.

Bei einer Umrüstung auf den Betrieb mit reinem OME sollte der Aufwand auf ein Minimum beschränkt werden. Hier herrscht ein Zielkonflikt zwischen den Kosten der Umrüstung und der möglichen Potenzialausschöpfung der Umrüstungsmaßnahmen. Dieser Ansatz hat hohe Relevanz in Nischenanwendungen wie bspw. den Industrie- und Stationärmotoren. Aber auch kleinere, gewerbliche Flotten mit lokaler, eigener Kraftstoffversorgung können hier in Betracht gezogen werden. Die Größe der zu bedienenden Flotte hängt maßgeblich mit dem Ausbau der OME-Produktionskapazität zusammen. Oberste Priorität für die Umrüstung auf einen 100 % OME-Betrieb ist, einen sicheren Motorbetrieb zu gewährleisten. Aus eigenen Untersuchungen sowie der Literatur ist bekannt, dass zum Ausgleich des Heizwertnachteils die eingespritzte Kraftstoffmenge erhöht werden muss. Dies ist durch eine Anpassung des Steuergerätedatenstandes möglich. Weiterhin muss die Materialverträglichkeit der kraftstoffführenden Komponenten sichergestellt sein. Von einigen Dichtungsmaterialien, die typischerweise in Dieselanwendungen zum Einsatz kommen, ist bereits bekannt, dass sie bei Kontakt mit OME aufquellen und ggf. versagen [13]. Diese müssten gegen chemisch beständigere Materialien ausgetauscht werden. Aus der praktischen Erfahrung des Instituts sind bisher keine Schwierigkeiten im Versuchsbetrieb mit metallischen Werkstoffen bekannt. Daraus können keine Schlüsse bezüglich des Langzeitverhaltens gezogen werden. Dementsprechend ist die Materialverträglichkeit von OME mit metallischen und anderen Werkstoffen Gegenstand aktueller Forschung.

Neben diesen notwendigen Anpassungen existieren eine Reihe von möglichen Anpassungen, die zur Wirkungsgradverbesserung (Minderung der CO₂-Emissionen) sowie zur weiteren Reduktion der Schadstoffemissionen beitragen können. Ein Beispiel dafür ist die Auslegung einer neuen Einspritzdüsengeometrie. Aufgrund der rußfreien Verbrennung und durch größere Düsennadelbohrungen kann der Einspritzdruck abgesenkt werden. Dies führt zu einem verbesserten Wirkungsgrad und kann Kosten einsparen, da die jeweiligen Komponenten weniger hoch belastet werden.

Zukünftig ist es selbstverständlich sinnvoll, neue Motorkonzepte gänzlich auf den Betrieb mit reinem OME auszulegen. Auch hier stehen Nischenanwendungen im Fokus. Für ein neues Motorkonzept wird das Brennverfahren für die Verbrennung von OME optimiert. Dazu zählt unter anderem die Anpassung der Einspritzung, der Gemischbildung und Entflammung sowie des Ladungswechsels. Dazu müssen unter anderem die Injektoren und das sonstige Kraftstoffsystem entsprechend dem erhöhten Kraftstoffbedarf angepasst werden. Weiterhin können neue Brennraumgeometrien in Betracht gezogen werden, die am konventionellen Dieselmotor nicht umzusetzen waren. So wird auf die Gemischbildung und ebenfalls auf den Ladungswechsel Einfluss genommen. Die Zielgrößen zur Optimierung bleiben etwa die gleichen: Hoher Wirkungsgrad, niedrige Schadstoffemissionen und gute Dynamik des Antriebs. Zur weiteren Reduktion der Schadstoffemissionen wird ebenfalls das Abgasnachbehandlungssystem (AGN-System) an das Rohemissionsniveau von OME angepasst. Niedrigste Partikelemissionen auf Umgebungsniveau von Ballungsgebieten [1] könnten einen Entfall des Dieselpartikelfilters ermöglichen und zu einer Vereinfachung des AGN-Systems führen. Auf diesem Wege ist eine Kostenersparnis möglich.

Der Betrieb mit reinem OME ermöglicht ebenfalls neuartige Regelungsstrategien und -prinzipien des Motors, der Motorperipherie und des AGN-Systems. So werden die eingangs genannten Entwicklungsziele bei der Reinkraftstoffanwendung erreicht.

Im Gegensatz dazu steht bei der Einführung von Blends die Erreichung der jeweils gültigen CO₂-Grenzwerte im Fokus. Im Allgemeinen gilt es, einen sicheren Betrieb mit den jeweiligen Blendstufen in der Bestandsflotte und in Neufahrzeugen zu gewährleisten. Durch den Einsatz von Blends ist eine flächendeckende Einführung in den Massenmarkt möglich. Durch die Beimischung von regenerativ hergestelltem OME wird so bilanziell eine entsprechende Minderung der CO₂-Emissionen erreicht. Eine Möglichkeit ist es, den Blendanteil kontinuierlich mit Hochlauf der Massenproduktion von OME zu erhöhen. Dabei gilt es zu untersuchen, ab welchem Blendanteil Hardware- und Softwareanpassungen unbedingt notwendig sind. Ebenso muss geprüft werden, bis zu welchem OME-Anteil der Blend noch der für Dieselkraftstoff gültigen DIN EN 590 entspricht. So kann ggf. auf eine Normung eines neuen Kraftstoffes verzichtet werden. Weiterhin stellt sich die Frage, ob ein definierter Blend im Markt vorhanden ist oder dieser ggf. variieren kann. Dies muss entsprechend in der Applikation und Betriebsstrategie des Motors berücksichtigt werden. Bei Untersuchungen von Continental wurde bei geringen Beimischungen bis zu 15 % auf eine Anpassung des Datenstandes sowie der kraftstoffführenden Komponenten verzichtet, um den Einfluss von OME zu identifizieren [14]. Dabei wird bilanziell betrachtet eine CO₂-Minderung von 8 g/km erzielt. Die Materialverträglichkeit muss auch beim Betrieb mit Blends sichergestellt sein.

Jedes dieser Markteinführungsszenarien wird in Form verschiedenster Untersuchungen von Konzepten am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe der Technischen Universität Darmstadt betrachtet. Nachfolgend werden dazu entsprechende Ergebnisse und Erkenntnisse aus experimentellen Untersuchungen des Instituts vorgestellt.

4 Untersuchungen am Einzylinderforschungsmotor

Zu Beginn der Untersuchungen von OME lag der Fokus überwiegend bei der Anwendung von OME als Reinkraftstoff, um mögliche Potentiale aufzuzeigen. Insbesondere am Einzylinderforschungsmotor des Instituts konnten bereits vielversprechende Ergebnisse demonstriert werden. Von einem Vergleich von konventionellem Dieselkraftstoff und OME bei dieseltypischem Mager-Motorbetrieb [1] bis hin zu einem neuartigen Lastregelungskonzept und dem stöchiometrischen Betrieb mit Dreiwegkatalysator [2, 3] wurden verschiedenste Konzepte untersucht und verglichen. Der Versuchsaufbau des Einzylinderforschungsmotors ist durch eine große Variabilität bezüglich der Einstellbarkeit von Betriebspunkten und -parametern gekennzeichnet. Zur detaillierten Untersuchung der Schadstoffemissionen sowie des thermodynamischen Verhaltens kommt umfangreiche Präzisionsmesstechnik zum Einsatz. Eine Skizze des Versuchsaufbaus ist Abbildung 10 zu entnehmen.

Die beschriebene rußfreie Verbrennung wurde bereits in einer Vielzahl von Publikationen nachgewiesen [1–6]. Aufgrund dieser Eigenschaft ist der von konventionellem Dieselkraftstoff bekannte Zielkonflikt zwischen niedrigen Partikel- und niedrigen Stickoxidemissionen eliminiert. Dies ermöglicht den Betrieb bei deutlich höheren Abgasrückführaten, was zu einer innermotorischen Minderung der Stickoxidemissionen

führt. So liegen die Stickoxidemissionen ausgewählter Betriebspunkte deutlich unter dem gesetzlich vorgeschriebenen Grenzwert, wie in Abbildung 11 zu sehen ist. Für eine detaillierte Diskussion der Last- und AGR-Variation sei auf [6] verwiesen.

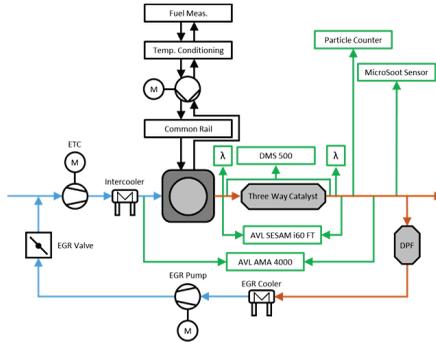


Abbildung 10: Schematischer Aufbau des Einzylinderforschungsmotors

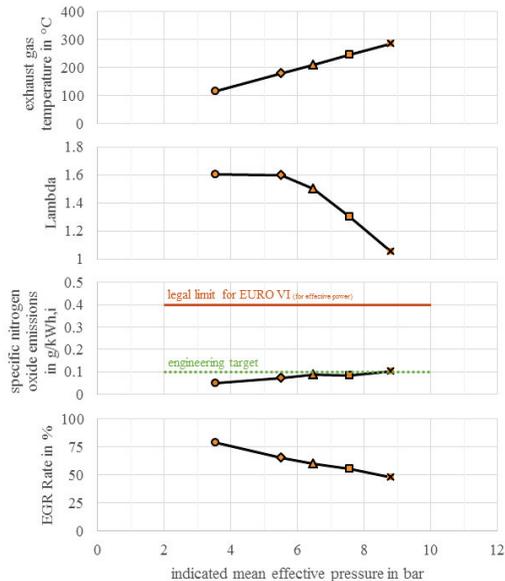


Abbildung 11: Verschiedene Messgrößen für eine Last- und AGR-Variation. [6]

Abbildung 12 sind die Verläufe für die Partikelgrößenverteilungen der entsprechenden Betriebspunkte zu sehen.

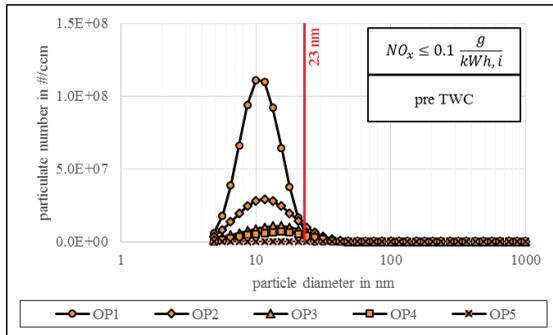


Abbildung 12: Partikelanzahlkonzentration für verschiedene Betriebspunkte. [6]

Bei der Verbrennung mit OME entstehen überwiegend sehr feine Partikel. Im gesetzlich relevanten Bereich der Partikeldurchmesser größer 23 nm liegt die Partikelanzahlkonzentration in der Größenordnung des Umgebungsniveaus von Ballungsgebieten [1]. Für die zukünftige Gesetzgebung wird sicherlich der Bereich unterhalb von 23 nm relevant werden.

In

Abbildung 13 ist ein Vergleich der Partikelgrößenverteilungen von Diesel und OME vor einem Dreiwegekatalysator und OME nach einem Dreiwegekatalysator dargestellt. Es ist deutlich zu sehen, dass die feinen Partikel leicht vom Katalysator oxidiert werden. Dieses Phänomen wurde ebenfalls an einem Vanadium-SCR-Katalysator detailliert untersucht [15, 16].

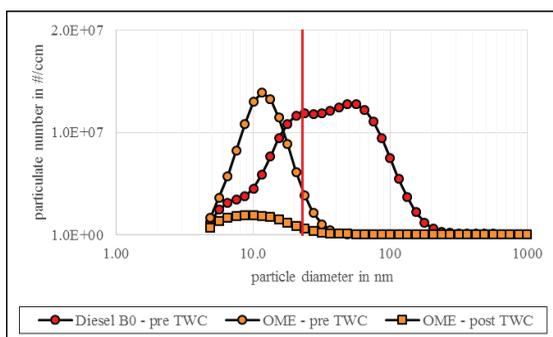


Abbildung 13: Vergleich der Partikelgrößenverteilung für Diesel und OME vor Dreiwegekatalysator und OME nach Dreiwegekatalysator [6]

5 Untersuchungen am OME-Forschungsfahrzeug

Neben den Untersuchungen an Motorenprüfständen wurde am Institut ein OME-Forschungsfahrzeug umgerüstet und in Betrieb genommen. Mit dem Forschungsfahrzeug konnte die grundsätzliche Eignung von OME sowie bspw. die rußfreie Verbrennung unter Realfahrtbedingungen nachgewiesen werden [4–6].

Das Fahrzeug ist ein SUV mit 140 kW Leistung und einem manuellen 6-Gang-Getriebe. Die Anpassung der Einspritzmenge zum Ausgleich des Heizwertnachteils wird durch ein Zusatzsteuergerät ermöglicht. Das Abgasnachbehandlungssystem besteht aus einem Dieseloxydationskatalysator mit NO_x-Speicherkatalysator sowie einem Dieselpartikelfilter. Das Fahrzeug, welches in Abbildung 14 zu sehen ist, wurde mit portabler Emissionsmesstechnik sowie einer Indizierung ausgestattet.



Abbildung 14: OME Versuchsfahrzeug mit PEMS-Aufbau

In Abbildung 15 ist die Partikelanzahl für den ersten Stadtteil verschiedener RDE-Fahrten dargestellt. Die roten Linien zeigen Fahrten mit konventionellem Dieseldieselkraftstoff. Die orangenen Linien zeigen Fahrten mit reinem OME3-5. Die blauen Linien stellen die Ergebnisse von Umgebungsmessungen dar und wurden auf eine äquivalente Partikelanzahl umgerechnet. Sowohl mit OME3-5 als auch mit Dieseldieselkraftstoff liegt man bezüglich der Partikelanzahl unter dem Umgebungsniveau. [5]

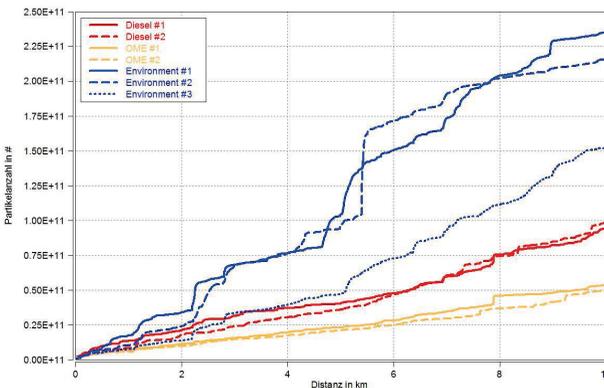


Abbildung 15: Partikelanzahl im ersten Stadtteil für RDE-Fahrten mit OME, Diesel und der äquivalenten Partikelemission in der Umgebung [5]

Aktuell sind RDE-Fahrten mit OME-/Diesel-Blends Gegenstand der Untersuchungen am Forschungsfahrzeug. Die Fahrten werden mit reinem Dieseldieselkraftstoff, 7 % und 15 % OME-Anteil jeweils mit und ohne Anpassung der Motorsteuerung durchgeführt. Abbildung 16 sind Messergebnisse von RDE-Fahrten mit Kaltstart und ohne Anpassung der Motorsteuerung dargestellt. Wie zu erwarten kann mit steigendem OME-Anteil eine signifikante Reduktion der Partikelanzahl bewirkt werden. Der Anstieg der NO_x-Emissionen kann durch Anpassung der Motorapplikation, bspw. durch Erhöhung der AGR-Rate, kompensiert werden.

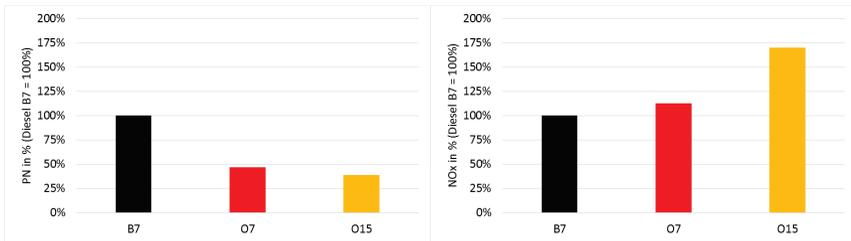


Abbildung 16: Partikelanzahl- und Stickoxidemissionen von Kaltstart-RDE-Fahrten.

6 Fazit und Ausblick

Die Verwendung von synthetischen, CO₂-neutral herstellbaren Kraftstoffen stellt einen essentiellen Beitrag zu einem klimaneutralen und emissionsarmen Transport in Zukunft dar. OME hat sich inzwischen mehrfach als hervorragend geeignete Alternative zum konventionellen Dieseldieselkraftstoff erwiesen. Das Potential konnte bereits anhand verschiedener Versuchsträger auf den Motorenprüfständen sowie mit dem Forschungsfahrzeug am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe demonstriert werden.

Für eine mögliche Markteinführung sind verschiedene Szenarien denkbar. Sowohl die Einführung als Reinkraftstoff, aber auch als Blend, sind aus technologischer Sicht sinnvoll. Die Entscheidung für ein Szenario hängt maßgeblich mit der Höhe der zu erwartenden Produktionskapazität von OME ab. Weiterhin gilt es für die jeweilige Anwendung zu prüfen, in welchem Verhältnis Kosten und Nutzen für etwaige Umrüstungsmaßnahmen stehen.

Literaturverzeichnis

1. MÜNZ, M., A. FEILING, C. BEIDL, M. HÄRTL, D. PÉLERIN und G. WACHTMEISTER. Oxymethylene ether (OME1) as a synthetic low-emission fuel for DI diesel engines. In: J. LIEBL und C. BEIDL, Hg. *Internationaler Motorenkongress 2016*. Wiesbaden: Springer Fachmedien Wiesbaden, 2016, S. 537-553. ISBN 978-3-658-12917-0.
2. MÜNZ, M., A. MOKROS und C. BEIDL. Ermöglichen Oxygenat-Kraftstoffe den Drei-Wege-Katalysator am Dieselmotor? In: FÖRDERKREIS ABGASNACHBEHANDLUNGSTECHNOLOGIEN FÜR DIESELMOTOREN E.V., Hg. *Beiträge zur 14. FAD-Konferenz. Herausforderungen - Abgasnachbehandlung für Dieselmotoren*, S. 183-200.

3. MÜNZ, M., D. TÖPFER, A. MOKROS und C. BEIDL. Oxygenate fuel in a Diesel engine – Is a CI engine capable of lambda 1? In: *4th International Engine Congress*, 2017, S. 457-472.
4. MÜNZ, M., A. MOKROS und C. BEIDL. OME im Dieselmotor – Potentialbewertung am Motoren-prüfstand und im Fahrzeug. In: FÖRDERKREIS ABGASNACHBEHANDLUNGSTECHNOLOGIEN FÜR DIESELMOTOREN E.V., Hg. *Beiträge zur 15. FAD-Konferenz. Herausforderungen - Abgasnachbehandlung für Dieselmotoren*.
5. MÜNZ, M., A. MOKROS, D. TÖPFER und C. BEIDL. OME - Partikelbewertung unter Realfahrbedingungen [online]. *MTZ - Motortechnische Zeitschrift*, 2018, **79**(3), 16-21. ISSN 0024-8525. Verfügbar unter: doi:10.1007/s35146-017-0184-y
6. MÜNZ, M., A. MOKROS und C. BEIDL. OME in the diesel engine - a concept for CO₂ neutrality and lowest pollutant emissions. In: *5th International Engine Congress*, 2018, S. 445-458.
7. ZHU, R., X. WANG, H. MIAO, X. YANG und Z. HUANG. Effect of dimethoxy-methane and exhaust gas recirculation on combustion and emission characteristics of a direct injection diesel engine [online]. *Fuel*, 2011, **90**(5), 1731-1737. ISSN 00162361. Verfügbar unter: doi:10.1016/j.fuel.2011.01.035
8. REN, Y., Z. HUANG, H. MIAO, Y. DI, D. JIANG, K. ZENG, B. LIU und X. WANG. Combustion and emissions of a DI diesel engine fuelled with diesel-oxygenate blends [online]. *Fuel*, 2008, **87**(12), 2691-2697. ISSN 00162361. Verfügbar unter: doi:10.1016/j.fuel.2008.02.017
9. VERTIN, K.D., J.M. OHI, D.W. NAEGELI, K.H. CHILDRESS, G.P. HAGEN, C.I. MCCARTHY, A.S. CHENG und R.W. DIBBLE. Methylal and Methylal-Diesel Blended Fuels for Use in Compression-Ignition Engines [online]. SAE 1999-01-1508, 1999. Verfügbar unter: doi:10.4271/1999-01-1508
10. KOCIS, D., K. SONG, H. LEE und T. LITZINGER. Effects of Dimethoxymethane and Dimethylcarbonate on Soot Production in an Optically-accessible DI Diesel Engine [online]. SAE 2000-01-2795, 2000. Verfügbar unter: doi:10.4271/2000-01-2795
11. MAUS, W., E. JACOB, M. HÄRTL, P. SEIDENSPINNER und G. WACHTMEISTER. Synthetic Fuels – OME1: A Potentially Sustainable Diesel Fuel. In: H.P. LENZ, Hg. *35. Internationales Wiener Motorensymposium*. Düsseldorf: VDI-Verl., 2014, S. 325-347.
12. PELLEGRINI, L., M. MARCHIONNA, R. PATRINI, C. BEATRICE, N. DEL GIACOMO und C. GUIDO. Combustion Behaviour and Emission Performance of Neat and Blended Polyoxymethylene Dimethyl Ethers in a Light-Duty Diesel Engine. In: *SAE 2012 World Congress & Exhibition: SAE International400 Commonwealth Drive, Warrendale, PA, United States*, 2012.
13. MOKROS, A., M. MÜNZ und C. BEIDL. Potential for Ultra-low Emissions with OME and TWC on a CI Engine. In: *5th TMFB Conference Tailor-Made Fuels - Book of Abstracts*, S. 100-103.
14. RÖSEL, G., G. AVOLIO, J. GRIMM, O. MAIWALD, O. KASTNER und R. BRÜCK. Diesel - e-fuel blends for simultaneous reduction of real driving NO_x and CO₂ emissions. In: *5th International Engine Congress*, 2018, S. 501-522.
15. FEILING, A. und C. BEIDL. Methodological Study of the PM Reduction over Vanadium SCR. In: *WKM Journal 2017*.
16. FEILING, A. und C. BEIDL. PM Reduction over Vanadium SCR. In: *ATZlive - Heavy-Duty-, On- und Off-Highway-Motoren 2016*.



Ausblick auf zukünftige PtX-Kraftstoffe für die ländliche Mobilität

Joachim Dohmann

Abstract

Future fuels for rural mobility purposes can be produced by hydrogenation of CO₂ which can be captured e.g. from fermentation gas or CHP-plant flue gases. It is shown that at least 2/3 of the actual fuel demand can be provided by these e-fuels techniques.

1 Einleitung

Die breite Verwendung alternativer Kraftstoffen für mobile Anwendungen wird seit vielen Jahren diskutiert, gelangte aber bisher nicht über den Status einer Vision hinaus ([Asi86], auch [Ola06], [Ber14]).

Mit dem Ziel, petrochemische Importkraftstoffe zu substituieren, schlug Asinger bereits in den 1980er Jahren Methanol als Kraftstoff vor. Sowohl staatliche ([Ban83], [Asi86]) als auch privatwirtschaftliche Institutionen (z.B. VW [Men82]; Opel [Mue80], Aral (vgl. [Ban83])) befassten sich intensiv mit dieser Option. Die Gründe für die fehlende Umsetzung sind vor allem in der damaligen Ölpreisentwicklung aber auch in der fehlenden Nachhaltigkeit des Konzeptes zu sehen. Die vorgeschlagenen Synthesekraftstoffe würden nach heutigem Verständnis nicht als nachhaltig angesehen werden, sollte doch vorrangig Kohle als Rohstoff eingesetzt werden.

Heute, mehr als 30 Jahre nach diesen ersten Initiativen, drängen andere Motive zum Handeln. Stand früher die Unabhängigkeit von Rohstoffimporten und der Schutz des Kohlebergbaus im Vordergrund, so ist es heute mehr die Verantwortung im Umgang mit den knapp werdenden fossilen Rohstoffen. Ferner drängen uns Fragen des Klimaschutzes. Die aktuelle Energiestudie der BGR [BGR17] weist ein Allzeithoch der Erdölförderung und der energiebedingten CO₂-Emissionen aus, während die CO₂-Konzentration in der Erdatmosphäre jährlich neue Rekordwerte erreicht.

Aus diesem Grund ist die Synthese von Kraftstoffen aus CO₂ und elektrolytisch gewonnenem Wasserstoff eine geeignete Option, den Anforderungen an Ressourcenschonung und Klimaschutz gerecht zu werden. Dies setzt allerdings voraus, dass die eingesetzte elektrische Energie aus erneuerbaren Quellen stammt, wie z.B. Windenergie- oder Photovoltaikanlagen. Derartige Synthesekraftstoffe werden mit dem Oberbegriff Power-to-X (PtX) Kraftstoffe bezeichnet.

In diesem vorliegenden Beitrag wird am Zahlenbeispiel des Landkreises Lippe (NRW) aufgezeigt, dass es möglich ist, PtX-Kraftstoffe in dezentralen Anlagen zu synthetisieren und der Verwendung im Mobilitätsbereich zuzuführen.

2 Synthesewege

2.1 Syntheseprinzip

PtX-Kraftstoffe werden aus einem Synthesegas hergestellt. Im klassischen Fall besteht Synthesegas aus einem Gemisch aus Kohlenstoffmonoxid CO und Wasserstoff H₂. Dieses wird bis auf wenige Ausnahmen aus fossilen Energieträgern wie z.B. Erdöl, Erdgas oder Kohle hergestellt (vgl. [Arp07], S. 15ff).

Im Sinne einer dezentralen Herstellung von Kraftstoffen sind die der Synthesereaktion zugeführten Edukte stattdessen Kohlenstoffdioxid CO₂ und Wasserstoff H₂. Die Reaktionen zum PtX-Kraftstoff werden als Hydrierreaktionen bezeichnet.

Abb. 1 verdeutlicht eine der möglichen Varianten. In dieser Variante wird elektrische Energie vorzugsweise aus Windenergieanlagen (WEA) oder photovoltaischen Anlagen (PV) einer Wasserelektrolyse zugeführt. Der hier erzeugte Wasserstoff stellt im übertragenen, anschaulichen Sinn einen Energieträger dar, der die nachfolgenden chemischen Reaktionen zum PtX-Kraftstoff mit Energie "versorgt". In der in Abb. 1 dargestellten Variante wird Kohlenstoffdioxid CO₂ aus Biogas abgetrennt. Beide Komponenten werden in einem Reaktor zur Reaktion gebracht. Es handelt sich in den bekannten Verfahren stets um heterogen-katalytische Reaktionen. Je nach Reaktionsbedingungen wie Druck, Temperatur und verwendetem Katalysator entstehen unterschiedliche Produkte. Allen Verfahrensvarianten ist gemein, dass in nicht unerheblichem Umfang Wärme freigesetzt wird. Ferner entsteht in allen Varianten das Koppelprodukt Sauerstoff. Sowohl Prozesswärme als auch der erzeugte Sauerstoff können im Sinne einer Sektorkopplung eingesetzt werden.

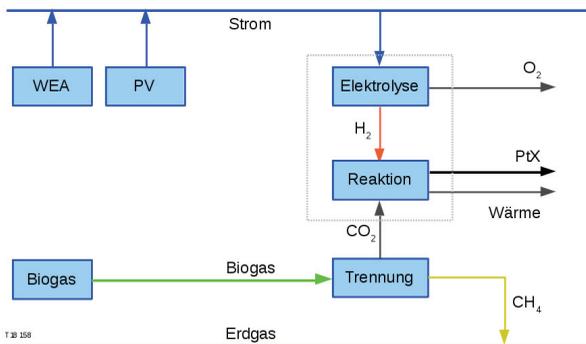


Abb. 1: Prinzip der Synthese von PtX-Kraftstoffen

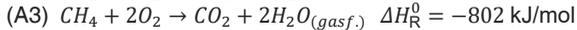
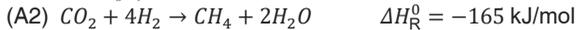
2.2 Synthese-Varianten

(A) Sabatier-Synthese

Das älteste bekannte Hydrierverfahren basiert auf dem Sabatier-Prozess. Als Endprodukt wird Methan erhalten. Das Verfahren wird auch als Power-to-Gas-Verfahren



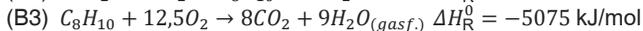
bezeichnet. Die Reaktionen sind gekennzeichnet durch die folgenden Teilschritte: Elektrolyse, Synthese und Verbrennung.



Die Addition dieser drei chemischen Gleichungen weist aus, dass prinzipiell eine Kreisprozessführung möglich ist.

Die angegebenen Reaktionsenthalpien sind Standardreaktionsenthalpien und stellen eine Näherung dar für die auftretenden Energieumsätze. Wenn angenommen wird, dass die Verbrennung von Methan in einer modernen, optimierten und angepassten Kolbenmaschine erfolgt, so ist im Leistungsbereich um 150 kW ein Wellenwirkungsgrad von 37% (vgl. [2G18]) realistisch. Damit lassen sich im konkreten Beispiel rund 300 kJ/mol nutzen. Der theoretische Systemwirkungsgrad beträgt $300/1143 = 26\%$. Dieser Wirkungsgrad kann mit demjenigen der anderen Verfahren verglichen werden.

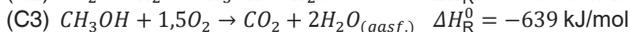
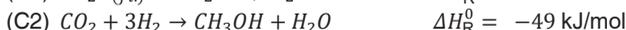
(B) Fischer-Tropsch-Synthese



Die Fischer-Tropsch-Synthese wird hier am Beispiel der Oktan-Synthese formuliert. In der Realität basiert der FT-Mechanismus auf einem sukzessiven Aufbau von C-C-Molekülketten. In keinem Fall wird ein Reinstoff erhalten, sondern ein Spektrum unterschiedlich großer Kohlenwasserstoffe. Durch die Reaktionsbedingungen lässt sich die mittlere Kettenlänge variieren. Bei der FT-Kraftstoffsynthese lassen sich simultan Ottokraftstoffe, Kerosin und Dieselkraftstoffe erhalten. Diese müssen in einem thermischen Trennverfahren ähnlich einer Raffination voneinander getrennt werden. Der Wirkungsgrad des Systems aus Elektrolyse, FT-Synthese und motorischer Verbrennung beträgt $\eta = 0,37 \cdot 5074/7146 = 0,262$ und entspricht damit dem für die Sabatierkraftstoffsynthese.

(C) Asinger-Olah-Synthese

Die Methanolsynthese basiert auf einem in den 1930er Jahren bei BASF entwickelten Hochdruckverfahren (300 bar), bei dem Synthesegas in einem Schritt katalytisch zu einem Methanol-Wasser-Gemisch reagiert. Im Laufe der Jahre wurde der Katalysator mehrfach modifiziert. Große Bedeutung hat heute der CuO-ZnO-Al₂O₃-Kontakt, der Reaktionsbedingungen von 50 bar und 240°C erlaubt (vgl. [Arp07], S. 33). Der Prozess erfordert lediglich eine destillative Trennung von Wasser und Methanol und liefert hohe Produktqualitäten.



Der Systemwirkungsgrad beträgt $\eta = 0,37 \cdot 639/858 = 0,275$ und liegt damit im gleichen Wertebereich wie die zuvor genannten Prozesse.

Die drei verschiedenen Synthesevarianten sind aus energetischer Sicht also als gleichwertig anzusehen. Die Wahl sollte nach Maßgabe des gewünschten Produktes erfolgen. In jedem der Fälle gelingt die Synthese eines Kraftstoffs auf Basis von "Strom" und CO₂.

Der Sabatier-Power-to-Gas-Prozess ist seit einigen Jahren Inhalt intensiver Forschungen an verschiedenen Forschungseinrichtungen. Zu nennen ist z.B. die Power-to-Gas Anlage der Audi AG am Standort Werlte. Hier wird Methan in das Erdgasnetz eingespeist. Unter Nutzung von Gaskavernenspeichern können prinzipiell große Mengen Methan gespeichert werden. Die Entnahme erfolgt an CNG-(Compressed Natural Gas) Tankstellen. Wegen der tiefen Verzweigung des Gasnetzes in Deutschland können zur Entnahme Tankstellen flächendeckend installiert werden. Hervorhebenswert ist ein Forschungsvorhaben des Fraunhofer-Instituts IEE Kassel, in dem die Direktmethanisierung von Biogas im halotechnischen Maßstab erfolgt. Biogas wird gereinigt, der Methananteil wird gemeinsam mit dem CO₂-Anteil dem Sabatier-Prozess unterworfen. Eine aktuelle Übersicht über verschiedene Projekte wird von der DENA geboten (vgl. www.powertogas.info). Eine Übersicht über verschiedene Power-to-Gas Technologien und deren Wirtschaftlichkeit wird von Götz et al. [Goe16] gegeben. Die Power-to-Gas-Technologie hat die Reife für eine breite technische Nutzung erreicht. Auch der Nachteil der vergleichsweise großen Reaktionswärme - eine fehlerhafte Temperaturführung deaktiviert den Katalysator - dürfte durch die ausgeführten Beispiele als beherrschbar gezeigt sein. Ein bleibender Nachteil dieser Methode für die Mobilität ist, dass Methan gasförmig ist und unter erhöhtem Druck in Fahrzeugen mitgeführt werden muss. Über die Methode einer starken Abkühlung zur Dampfdruckerniedrigung wird aktuell nachgedacht (LNG-Kraftstoff).

Die Fischer-Tropsch-Synthese auf Basis konventionellen Synthesegases ist bereits seit den 1920er Jahren bekannt und im großtechnischen Einsatz (vgl. [Bae13] S. 576). Die fast 100jährige Geschichte hat bezüglich der Prozessbedingungen und Produktspektren verschiedene Varianten hervorgebracht. Die Nutzung von CO₂ als Kohlenstoffquelle für die Fischer-Tropsch-Synthese mit dem Ziel der Gewinnung von PtX-Kraftstoffen wurde bereits von Dittmeyer u.a. intensiv untersucht (vgl. [Dit17], [Pie17]), Pilotanlagen im technischen Maßstab wurden geschaffen. Erste Unternehmen bieten kommerzielle Kleinanlagen an (z.B. Ineratec GmbH, Karlsruhe). Auch hier kann eine Technologiereife festgestellt werden.

Die Methanolsynthese auf Basis konventionellen Synthesegases ist weltweit Stand der Technik. Die Jahresproduktion liegt bei 79 Mio. t/a (Stand 2010, vgl. [Bae13], S. 581). Methanol wird überwiegend in Großanlagen synthetisiert, es existieren aber auch erste Anlagen im mittelgroßen technischen Maßstab, z.B. an Standorten der Rheinischen Braunkohlenkraftwerke oder z.B. in der Größe 92.000 t/a in Hagfors, Schweden (vgl. varmlandsmethanol.se). Ein zukünftiger Entwicklungsbedarf hinsichtlich dezentraler Anlagen besteht darin, eine Anpassung der Großtechnologie auf Kleinmaßstäbe vorzunehmen.

Alle drei genannten PtX-Verfahren entsprechen mindestens dem Stand des Wissens und unter Hinblick auf dezentrale Versorgungsanlagen auch vereinzelt dem Stand der Technik. Die zu erwartenden technischen Hürden erscheinen prinzipiell als lösbar.

3 Produkte und Edukte

3.1 Methanol als Kraftstoff

Methanol ist ein exzellenter Otto-Kraftstoff sowie ein Chemiegrundstoff mit vielfältigen Verwendungsmöglichkeiten. Methanol verbrennt in einer sehr sauberen Verbrennung. Der spezifische Luftbedarf des Kraftstoffs ist geringer als bei anderen Ottokraftstoffen. Kolbenmaschinen weisen aus diesem Grund eine höhere maximale Leistung auf, da die Energiefreisetzung durch die Sauerstoffmenge im Zylinder begrenzt wird. Der Heizwert von Methanol ist mit 19,9 MJ/kg geringer als der von Oktan (44,5 MJ/kg). Um eine höhere Leistung und ein höheres Drehmoment in einem Ottomotor zu erreichen, ist daher das einzuspritzende Kraftstoffvolumen rund doppelt so hoch wie bei herkömmlichen Ottokraftstoffen. Potenziell mit Reinmethanol betriebene Motoren müssen daher modifizierte Einspritzsysteme erhalten.

In der Literatur (z.B. [Men82]) werden Aspekte genannt, die gegen eine Verwendung von Methanol als Kraftstoff sprechen könnten. Methanol ist etwas hygroskopisch und mit Wasser in beliebigem Verhältnis mischbar. Bei der Vermengung mit Benzin tritt eine Entmischung auf, es entsteht eine Wasserphase, die selbstverständlich nicht im Kraftstoffsystem auftreten darf. Abhilfe können Additive aus höheren Alkoholen als Lösungsvermittler darstellen oder aber Konzepte für Fahrzeuge, die ausschließlich mit Methanol betankt werden.

Ein wesentlicher Vorteil von Methanol ist aber die hohe Klopffestigkeit. Dies erlaubt den Bau von Motoren mit erhöhtem Verdichtungsverhältnis, was unmittelbar zu einem höheren Wirkungsgrad des Ottoprozesses führt. Es empfiehlt sich eine eigene Norm für Synthesekraftstoffe zu schaffen und zukünftige Fahrzeuge hierfür vorzubereiten.

3.2 CO₂-Quellen

Im ländlichen Raum stehen zahlreiche CO₂-Quellen zur Verfügung. In der vorliegenden Arbeit wurden diese für den Kreis Lippe durchmustert. Der Kreis Lippe ist ein ländlicher Kreis mit 350.000 Einwohnern, gekennzeichnet durch Land- und Forstwirtschaft sowie eine starke mittelständische Industrie.

CO₂ aus Biogasanlagen: Im Kreis Lippe sind aktuell 24 Biogasanlagen in Betrieb. Die Mehrzahl der Anlagen verwenden nachwachsende Rohstoffe, zwei der Anlagen beseitigen biogene Reststoffe. Die durchschnittliche Gasmenge beträgt 2,3 Mio m³/a. Die Jahresausbeute an Biogas beträgt rund 80 Mio m³/a. Die größte Anlage produziert rund 24 Mio m³/a und ist mit einer Abtrennung für Biomethan ausgestattet.

Bei der Bewertung des CO₂ aus Biogasanlagen sind zwei Grenzfälle zu unterscheiden. Der CO₂-Anteil im Biogas ist etwa 45 Vol%. Dieser Anteil kann nach einer CH₄/CO₂-

Trennung direkt zur PtX-Synthese genutzt werden (vgl. Abb. 1). Die lippischen Biogasanlagen können mit dieser Technik 70.500 t/a CO₂ gewinnen. Zu beachten ist, dass in diesem Fall Biomethan für die weitere Nutzung zur Verfügung steht und somit weiteres CO₂ gewinnbar ist. Der heute übliche Fall ist die Verwendung des Biogases in Gas-BHKW. Aus dem Abgas der Gas-BHKW lässt sich ebenfalls CO₂ abtrennen. In diesem Fall lassen sich max. 156.000 t/a CO₂ gewinnen.

CO₂ aus Holzverbrennungsanlagen: Holz wird in Verbrennungsanlagen eingesetzt. In Lippe sind z.Z. zwei ORC-Anlagen (Organic Rankine Cycle) zur kommunalen Wärmeversorgung im Einsatz mit Größen von 22 MW_{th} bzw. 6 MW_{th}. Ein Industrieunternehmen der holzverarbeitenden Industrie setzt Holz zur Prozesswärmeversorgung ein. Die Leistung beträgt 35-40 MW_{th}. Eine Bilanzierung der Anlagen ergibt einen jährlichen CO₂-Ausstoß von 160.000 t/a.

CO₂ aus Müll: Deutschlandweit werden 19,6 Mio t/a Müll in 68 Anlagen verbrannt. Mit einer Einwohnerzahl von 82,5 Mio Einwohnern ergibt dies eine bezogene Müllmenge von 0,24 t/(EW a). Übertragen auf die Einwohner des Kreises Lippe entspricht dies einem Müllaufkommen von 84.000 t/a. Dieser Müll wird in der Müllverbrennungsanlage Bielefeld (Jahreskapazität 420.000 t/a) verbrannt. Der durchschnittliche Kohlenstoffanteil in Hausmüll beträgt 25,5 Gew.%. Die auf Lippe entfallende CO₂-Emission aus Hausmüllverbrennung beträgt 78.500 t/a.

CO₂ aus Erdgasnutzung: Einige der lippischen Kommunen (z.B. Lemgo und Detmold) verfügen über sehr moderne Fernwärmenetze. Die Versorgung erfolgt durch KWK-Anlagen. Im Kreisgebiet sind einige Gasturbinen und zahlreiche Gas-BHKW der 2-MW-Klasse im Einsatz. In Lemgo mit 41.000 Einwohnern wird eine Gasmenge von 33 Mio m³/a in diesen KWK-Anlagen umgesetzt (Abb. 2).

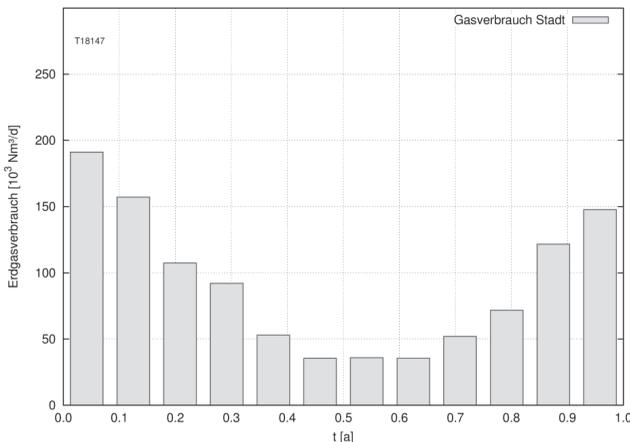


Abb. 2: Zeitlicher Jahrgang des Erdgasverbrauchs für KWK-Anlagen einer Kommune. Dargestellt sind Monatsmittelwerte.

Bei der genauen Bilanzierung der KWK-Anlagen im Kreisgebiet ergibt sich die Schwierigkeit, dass einige der BHKW mit Größen unterhalb von 500 kW_{el} als zu klein für die Gewinnung von CO₂ erscheinen. Zum anderen werden einige der BHKW mit Biomethan gespeist. Hier besteht die Gefahr einer doppelten Erfassung. Einige der KWK-Anlagen werden privatrechtlich betrieben. Auch diese Anlagen wurden bei der Bilanzierung nicht weiter berücksichtigt. Die Ermittlung des verwertbaren CO₂-Potentials aus erdgasbetriebenen KWK-Anlagen weist eine Menge von 100.000 t/a aus.

Die potentiell gewinnbaren CO₂-Mengen als Rohstoff für die PtX-Produktion in Lippe sind in Abb. 3 zusammengestellt. Die Gesamtmenge des gewinnbaren CO₂ beträgt 495.000 t/a. Dies entspricht pro Kopf einer Menge von 1,4 t/(EW a). Bei der Bilanzierung wurden einige der bekannten CO₂-Quellen nicht berücksichtigt, wie z.B. CO₂ aus Kläranlagen, Deponiegas, Kompostierungsanlagen und gewerbliche Feuerungsanlagen. Das ermittelte Potential ist damit als gesicherte Untergrenze zu verstehen.

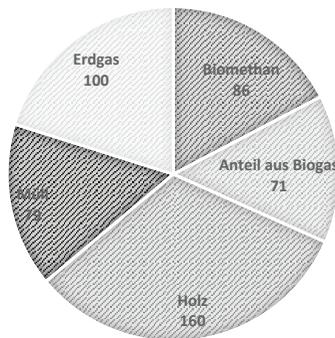


Abb. 3: Im Kreis Lippe gewinnbares CO₂ [in 1000 t/a] nach Herkunft

3.3 H₂-Quellen

Wichtigstes Merkmal nachhaltiger Synthesekraftstoffe ist die Herkunft des Wasserstoffanteils aus regenerativen Quellen. Zurzeit erscheint die Gewinnung aus der Wasserelektrolyse als eine realisierbare Variante. Die Zufuhr elektrischer Energie sollte immer aus regenerativen Quellen wie z.B. Sonne und Wind erfolgen. Stand der Technik sind PEM-Elektrolyseure. Einen höheren Wirkungsgrad weisen SOEC-Elektrolyseure auf. Eine harte Kopplung dieser SOEC-Elektrolyseure an PV- oder Windenergieanlagen ist wegen des volatilen Charakters dieser Quellen nicht empfehlenswert, da diese Elektrolyseure nur eine begrenzte Anzahl von Starts und Stopps erlauben. Jährliche Erträge aus einem Windpark und einer PV-Freiflächenanlage sind in Abb. 4 dargestellt.

Der Vergleich des Jahresgangs des CO₂-Angebots aus der Erdgasnutzung (Abb. 2) und des potentiellen Angebots regenerativen Stroms (Abb. 4) weist aus, dass die Verläufe nicht korreliert sind. Hieraus ergibt sich eine wichtige Anforderung an Versorgungssysteme: Die Ausübung einer zeitlich puffernden Wirkung. Ein zukünftiges System muss über ein ausreichendes Speichervermögen für mindestens eine der Komponenten Strom oder CO₂ verfügen. Die Optimierung der jeweiligen Speichergrößen stellt unter Berücksichtigung aller technischen und wirtschaftlichen Faktoren eine komplexe Aufgabe dar. Hieraus lässt sich ein zukünftiger Forschungsbedarf ableiten.

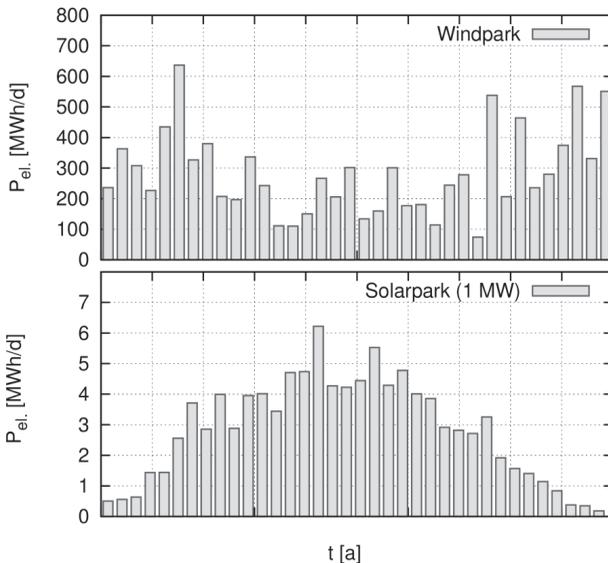


Abb. 4: Jährlicher Verlauf des Energieertrags aus Windkraft und Photovoltaik. Dargestellt sind 10 Tages-Mittelwerte.

4 Synthese

Die Gewinnung von Methanol als ein PtX-Beispiel erfolgt in zwei Schritten, der Gewinnung von Kohlenstoffdioxid und der eigentlichen Synthese. Für die Gasreinigung existieren verschiedene alternative Konzepte und Verfahrensvarianten. Die Diskussion spezifischer Vor- und Nachteile sei einem projektbezogenen Engineering überlassen. Es sei aber bemerkt, dass sowohl zahlreiche Anlagen und Ausführungsbeispiele existieren. Die zugrundeliegende Verfahrenstechnik entspricht dem Stand der Technik.

Hier sei als Beispiel die Gewinnung von CO₂ aus dem Abgas eines mit Erdgas betriebenen BHKWs genannt (Abb. 5). Das Abgas enthält neben CO₂ noch die Komponenten H₂O, O₂ sowie N₂. Zudem können je nach Wärmenutzungskonzept Temperaturen im Bereich oberhalb von 100 °C auftreten. Durch die Wäsche mit gekühltem Wasser wird das Abgas zunächst abgekühlt und teilentfeuchtet. Sofern SO₂ im Gasstrom enthalten ist, kann in dieser ersten Waschstufe eine Neutralisation unter Verwendung von

Natronlauge oder Kalkmilch erfolgen. Das aus dem Gasstrom auskondensierte Wasser wird abgeführt. Die Wärmeabfuhr erfolgt im genannten Beispiel mittels einer Wärmepumpe. Der Gasstrom wird einer physikalischen Amin-Wäsche unterworfen (vgl. hierzu [Koh97], S. 58).

Im Absorber wird CO_2 von der Waschflüssigkeit aufgenommen, im Desorber infolge einer Wärmezufuhr wieder abgegeben. Die Wärmezufuhr im Desorber erfolgt mittels der Wärmepumpe, kann aber alternativ auch mit Prozesswärme erfolgen.

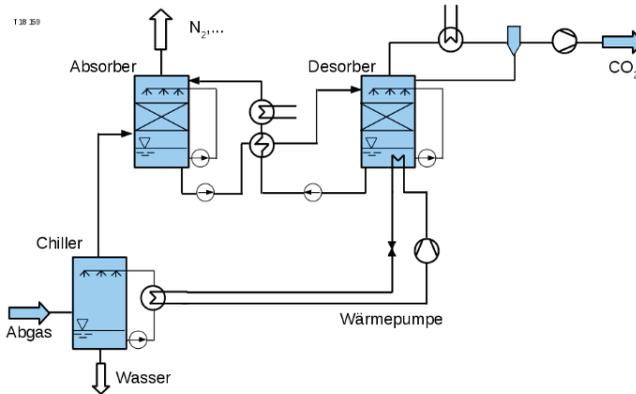


Abb. 5: Gewinnung von CO_2 aus dem Abgas eines BHKWs

Der anschließende Verfahrensschritt besteht darin, den Druck auf etwa 60 bar anzuheben. CO_2 liegt unter diesen Bedingungen in flüssiger Form vor und kann in diesem Zustand gut transportiert und gelagert werden.

Die eigentliche Umsetzung zum Methanol erfolgt in einem katalytischen Verfahren bei etwa 50 bar und 240°C . Das Verfahren hierzu ist in Abb. 6 dargestellt.

Ein H_2 / CO_2 -Gemisch mit geregelter Zusammensetzung wird einem Reaktor bei einem Druck von 50 bar zugeführt. Dieser Reaktor enthält einen Katalysator sowie ein Temperiersystem, das eine Temperatur um 240°C sicherstellt. Das gasförmige Reaktionsgemisch wird im Kreis gefahren, wobei Wärmeübertrager die Kondensation eines $\text{MeOH}/\text{Wasser}$ -Gemisches herbeiführen, das über einen Abscheider aus dem System geschleust wird. Fremdgase wie z.B. N_2 werden separat ausgeschleust. Das erzeugte Rohmethanol ist einer einfachen Destillation zuzuführen, bei der das Gemisch in "fuel-grade"-Methanol und Abwasser getrennt wird.

Anspruchsvoll ist die Anpassung der Anlagen an eine große Zahl von An- und Abfahrvorgängen bei gleichzeitiger Langlebigkeit, insbesondere des Katalysators. Erforderlich ist ein hoher Automatisierungsgrad, da derartige dezentrale Anlagen unbemannet betrieben werden müssen.

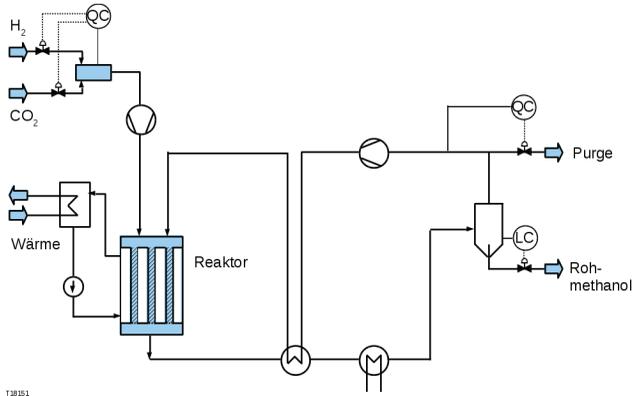


Abb. 6: Heterogen katalytische Reaktion zu Methanol (vgl. [Bae13], S. 584)

5 Versorgungsszenario

Wieviel Kraftstoff wird benötigt? Es ist zweckmäßig, den Kraftstoffbedarf statt durch eine Massen- oder Volumenangabe durch eine Energieeinheit auszudrücken. Der Pro-Kopf-Verbrauch an Kraftstoffen kann aus den Angaben des Umweltbundesamtes zu 0,70 t/(EW a) berechnet werden, wobei stark gerundet 1/3 auf Benzin und 2/3 auf Dieselmotorkraftstoffe entfallen. Unter Annahme eines mittleren Heizwerts von 11,6 kWh/kg folgt ein Pro-Kopf-Energiebedarf für Mobilitätszwecke von 8130 kWh/(EW a). Hierin sind der Individualverkehr sowie der Schwerlastverkehr eingerechnet, nicht jedoch der Bahn- bzw. Flugverkehr.

Wieviel PtX-Kraftstoff kann erzeugt werden? Das Potential der CO₂-Erzeugung in Lippe wurde mit 495.000 t/a bestimmt (s.o.), das entspricht einer Pro-Kopf-Erzeugung von 1400 kg CO₂/(EW a). Hieraus lassen sich bei idealer Rechnung 367.000 t/a Methanol erzeugen, umgerechnet 1020 kg Methanol/(EW a). Der Heizwert von Methanol beträgt 5,5 kWh/kg. Dem Verkehrssektor können also rund 5600 kWh/(EW a) zur Verfügung gestellt werden. Das entspricht einem Deckungsgrad von rund 2/3.

Wieviel elektrische Energie wird benötigt? Der Bedarf an elektrischer Energie bestimmt sich aus dem Systemwirkungsgrad, der das Verhältnis zwischen dem Heizwert eines PtX-Kraftstoffs und dem elektrischen Aufwand für die Elektrolyse darstellt. Dieser wird bei idealer Rechnung zu 0,275 berechnet. Der elektrische Mehrbedarf beträgt

$$P = \frac{5600}{0,275} = 20,3 \cdot 10^3 \frac{\text{kWh}}{\text{EW-a}}$$

Diese Zahl kann mit der aktuellen Stromerzeugung in Deutschland verglichen werden. Diese beläuft sich auf 650 Mrd. kWh/a, was einer Pro-Kopf-Erzeugung von rund 8000 kWh/(EW a) entspricht. Der Bedarf erhöht sich auf ca. 28.000 kWh/(EW a). Die Bereitstellung der elektrischen Energie aus nicht-fossilen Quellen wird eine wirkliche volkswirtschaftliche Zukunftsaufgabe darstellen.

6 Folgerungen

Einige Aspekte eines Versorgungsszenarios mit E-Fuels lassen sich aus den genannten Überlegungen ableiten:

- Gewinnbares CO₂ wird zukünftig ein knappes Gut und ein Handelsprodukt darstellen.
- Es entsteht ein erheblicher Mehrbedarf an elektrischer Energie in Höhe vom 2,5-fachen der aktuellen Erzeugung.
- Der Mehrbedarf an Energie verlangt nach vergrößerter Netztransportkapazität und dem Neubau regenerativer Anlagen.
- EEG-Umlagen müssen für E-Fuels-Syntheseanlagen entfallen.
- Fahrzeughersteller sollten ihre Fahrzeuge für E-Fuels vorbereiten.
- Eine Teilumsetzung des Konzepts führt schon zu einer wesentlichen Entlastung der fossilen Brennstoffressourcen und der damit verbundenen energiebedingten Emissionen.

Literatur

- [2G18] 2G Energie AG. Datenblatt zu gasbetriebenen BHKW-Motoren. www.2-g.com. (21.7.2018)
- [Arp07] Arpe, H.J.; Industrielle Organische Chemie. 6. Aufl. 2007, Wiley-VCH.
- [Asi86] Asinger, F.; Methanol - Chemie- und Energierohstoff. 1986. Springer Verlag
- [Bae13] Baerns, M.; Behr, A.; Brehm, A.; Gmehling, J. et al.: Technische Chemie. 2. Auflage 2013. Wiley VCH.
- [Ban83] Bandel, J.; (Hrsg.) Methanol. Alternative Energien für den Straßenverkehr. 1983. Verlag TÜV Rheinland.
- [Ber14] Bertau, M.; Offermanns, H.; Plass, L.; u.a. Methanol: The Basic Chemical and Energy Feedstock of the Future. 2014, Springer Verlag
- [BGR17] Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe. Energiestudie 2017.
- [Dit17] Dittmeyer, R.; Boeltken, T.; Piermartinie, P. et al.: Micro and micromembrane reactors for advanced applications in chemical engineering conversion. Current Option in Chemical Engineering 17 (2017) 108-125.
- [Goe16] Götz, M.; Lefebvre, J.; Mörs, F. et al.; Renewable Power-to-Gas: A technological and economic review. Renewable Energy 85 (2016) 1371-1390.
- [Koh97] Kohl, A.; Nielsen, R.; Gas Purification, 1997. Gulf Publishing Comp.
- [Men82] Menrad, H.; König, A.; Alkoholkraftstoffe. 1982. Springer Verlag
- [Mue83] Mündler, H.; Methanol - alternativer Kraftstoff für den Straßenverkehr. 3. Aufl., 1983. Firmenschrift Adam Opel AG, Rüsselsheim.
- [Ola06] Olah, G. A.; Goepfert, A.; Surya Prakash, G.K.; Beyond Oil and Gas: The Methanol Economy. 2006, Wiley-VCH
- [Pie17] Piermartinie, P.; Boeltken, T.; Selinsek, M.; Pfeifer, P.; Influence of channel geometry on Fischer-Tropsch synthesis in microstructured reactors. Chemical Engineering Journal 313 (2017) 328-335.

On-board Sensorik zur Kraftstofferkennung

Martin Unglert, J. Krahl

Abstract

Due to the increasing demands on the reduction of limited emissions and the longer residence times of fuels in tanks of plug-in hybrids, there is a need for a fuel sensor that can detect the fuel components as well as the aging. With a combination of near-infrared spectroscopy, dielectric relaxation spectroscopy, and fluorescence spectroscopy, it is possible to detect fuel parameters and determine the aging of fuels. The relevant fuel parameters by means of which the engine management can be adapted are aromatics, biodiesel or ethanol content as well as degree of isomerization and cetane number or octane number. The provided sensor data enable to avoid engine damage through fuel aging or incorrect fueling, and to optimize the combustion process.

1 Motivation

Die im Zusammenhang mit der zunehmenden Mobilität entstehenden Umweltbelastungen müssen verringert werden. Die Agenda der Gesetzgebung westlicher Länder sieht schon seit langem vor, Themen wie Minderung der Schadstoffemissionen, Reduzierung der CO₂-Emission und Einführung emissionsfreier Gebiete anzugehen. Politisch und medial oft propagiert sind Elektrofahrzeuge, die zunehmend Marktanteile gewinnen konnten. Die Reichweiten von rein elektrisch betriebenen Fahrzeugen sind aber derzeit noch begrenzt. Schätzungen zufolge wird der Anteil der reinen Elektrofahrzeuge in den nächsten Jahrzehnten nur bei ca. 5% liegen [1]. Mittelfristig könnten hier Plug-in Hybridfahrzeuge, eine Kombination aus Verbrennungsmotor und Elektromotor, als Brückentechnologie dienen. Dabei werden die Vorteile beider Technologien kombiniert: So kann lokal emissionsfrei gefahren und eine hohe Reichweite gewährleistet werden. Wird das allgemeine Fahrprofil der Europäer betrachtet, so zeigt sich, dass der überwiegende Anteil (ca. 80 %) aller gefahrenen Kilometer Kurzstrecken sind (<50 km) [2], beispielsweise die Fahrt zur Arbeit oder für den Einkauf. Hier würde der alleinige Elektrobetrieb ausreichen. Für die restlichen 20 %, z.B. Autobahnfahrten, wird der Verbrennungsmotor unterstützend zugeschaltet. Die kurzen Fahrtzyklen im Alltag machen es möglich, den Akkumulator stationär am Stromnetz aufzuladen. Dies hat zur Folge, dass der Kraftstoff in Plug-in Hybridfahrzeugen weit kritischeren Bedingungen ausgesetzt ist als bisher. Es ist mit einer erhöhten Verweilzeit des Kraftstoffes im Tank zu rechnen, die zu Veränderungen der physikalischen und chemischen Eigenschaften des Kraftstoffes führen kann.

Ein weiterer Aspekt, der nicht nur Plug-in Hybride betrifft, sondern Verbrennungsmotoren im Allgemeinen, ist die variable Kraftstoffzusammensetzung innerhalb der Normen DIN EN 590 und DIN EN 228. Die DIN EN 590 regelt die Dieselmotorkraftstoffqualität und die DIN EN 228 die Qualität von Ottomotorkraftstoffen. Trotz vorgegebener Grenzwerte kann innerhalb dieser mit einer variablen Zusammensetzung gerechnet werden. So sind Unterschiede im Verzweigungsgrad der Alkane, aber auch im Aromatengehalt sehr wahrscheinlich. Oftmals sind diese Unterschiede durch die Erdöl-Lagerstätte vorgegeben und können nur begrenzt beeinflusst werden. Weiterhin sind Biokraftstoffe der 1. Generation nach wie vor weltweit sehr stark vertreten. Diese werden aufgrund ihrer unterschiedlich hohen Beimischungsquoten [3], aber auch stark schwankender Qualitäten, zumindest aus Sicht der Automobilhersteller, als kritisch betrachtet. Diese Variabilität führt zu unterschiedlichen Cetanzahlen bzw. Octanzahlen und das Brenn- und Emissionsverhalten kann negativ aber auch positiv beeinflusst werden. Um das Treibhausgasemissionspotenzial weiter auszubauen, sind außerdem synthetische Kraftstoffe, die teilweise oder ganz aus regenerativem Strom hergestellt werden können, zunehmend in der Diskussion. Synthetische Kraftstoffe wie PtL Kraftstoffe (Power-to-liquid) haben gemein, dass sie aromatenfrei sind, nur in ihrer Alkanzusammensetzung variieren und fossilen Kraftstoffen beigemischt werden und damit zur CO₂-Reduktion beitragen können [4]. Unter den synthetischen Kraftstoffen sind jedoch auch Kraftstoffe zu finden, die in ihrer chemischen Struktur deutlich von fossilen Kraftstoffen abweichen. Diese sauerstoffhaltigen Kraftstoffe wie OME (Oxymethylenether) tragen jedoch erheblich zur Emissionsminderung bei [5]. Um fossile Kraftstoffe zukünftig zu ersetzen, müssen unterschiedliche Rohstoffquellen zur Erzeugung synthetischer Kraftstoffe verwendet werden. Daraus resultieren Kraftstoffe, die sich in ihrer chemischen Zusammensetzung stark unterscheiden können. Für eine optimale Verbrennung müssen die Kraftstoffkomponenten bzw. die Kraftstoffzusammensetzung zukünftig erkannt werden, damit das Motormanagement optimal eingestellt werden kann.

Tabelle 1: Übersicht der für einen Kraftstoffsensoren relevanten Kraftstoffparameter (Benzin und Dieselmotorkraftstoff) und die Auswirkungen auf das Emissionsverhalten [6][7][8][9][10]

Kraftstoffparameter	Auswirkungen auf Emissionen
Aromaten	HC, NO _x , CO ↑
Biodiesel	HC, CO, PN ↓, NO _x ↑
Ethanol	HC, CO, PN ↓, NO _x ↑
Alterungsgrad	CO, HC ↓, NO _x ↑
Sauerstoffgehalt	PM ↓
Cetanzahl	Mit zunehmender Cetanzahl: CO, HC, Benzol, 1,3-Butadien, Formaldehyd, Acetaldehyd ↓
Olefine	1,3-Butadien, HC, NO _x ↑
Flüchtigkeit	Nimmt zu: NO _x , HC ↑, PM, CO ↓
Dichte	Mit abnehmender Dichte: PM, HC, CO, Formaldehyd, Acetaldehyd, Benzol ↓, NO _x ↑

2 Aufbau der on-board Sensorik

2.1 Nahinfrarotspektroskopie

Die Nahinfrarotspektroskopie (NIR) umfasst den Wellenlängenbereich von 750 bis 2500 nm und erfasst die Obertöne und Kombinationsschwingungen der Molekülgruppen von IR-aktiven Molekülen. Mit Hilfe der Auswertemethode der kleinsten Quadrate kann aus NIR-Spektren auf die molekulare Zusammensetzung geschlossen werden. Mit der Gleichung 1 werden die Absorption ausgewählter Verbindungen bei verschiedenen Wellenlängen mit den prozentualen Anteilen von CH₃-, CH₂-n- und CH₂-Cycloalkanen in Verbindung gesetzt.

$$A = KC \quad (1)$$

Die K-Matrix, die die Korrelation zwischen Absorption und Konzentration beschreibt, wird nach Gleichung 2 bestimmt.

$$K = AC^T (CC^T)^{-1} \quad (2)$$

Mit dem Absorptionsvektor a ergeben sich die Anteile der CH₃-, CH₂-n- und CH₂-Cycloalkan-Molekülgruppen einer Probe mit der Gleichung 3.

$$c = (K^T K)^{-1} K^T a \quad (3)$$

Für die Konditionierung der K-Matrix wurden ausgewählten Verbindungen verwendet, die eine Auswertung der Kombinationsschwingungen ermöglichen. Dazu wurden für die Molekülgruppen charakteristische Wellenlängen identifiziert, die prozentualen Anteile der Molekülgruppen errechnet und mit den Absorptionen bei den charakteristischen Wellenlängen korreliert.

Für die Bestimmung des Biodiesel- und Aromatenanteils wurden die Wellenlängen 2143 nm und 2177 nm herangezogen, bei denen die CO- und aromatischen CH-Bindungsschwingungen Teil der Kombinationsschwingung mit CH₃-, CH₂-n- und CH₂-Cycloalkane darstellen. Die Absorptionsbanden CO- (2143 nm) und aromatische CH-Schwingung (2177 nm) weisen Quereinflüsse auf, die eine vergleichende Betrachtung erforderlich machen. Hierzu wurde ein Modellkraftstoff im Simplex-lattice Design verwendet, mit dessen Hilfe die Quereinflüsse bei der Auswertung berücksichtigt wurden. Im Simplex-lattice Versuchsaufbau sind unterschiedliche Kraftstoffzusammensetzungen des Modellkraftstoffs hinterlegt, mit denen die Absorption bei 2143 nm und 2177 nm verglichen wird. Aus dem Abgleich der Absorptionen kann das Verhältnis von Alkanen, Biodiesel und Aromaten bestimmt werden. Durch die Tatsache, dass alle Schwingungsbanden im NIR Kombinationsschwingungen darstellen bzw. sich stark überlagern, beeinflusst die Alkanzusammensetzung die Genauigkeit der Biodiesel- und Aromatenbestimmung. Aus diesem Grund werden die Anteile an CH₃-, CH₂-n- und CH₂-Cycloalkanen herangezogen, um diesen Einfluss zu minimieren und die Zuordnungsgenauigkeit zu erhöhen. Aus dem Zusammenspiel der Auswertung der kleinsten Quadrate und dem Vergleich mit einem Modellkraftstoff im Simplex-lattice Design können CH₃-, CH₂-n-, CH₂-Cycloalkane sowie der Biodiesel- und Aromatengehalt be-

stimmt werden. Aus diesen Informationen lassen sich Aussagen über den Sauerstoffgehalt von Dieselmotorkraftstoffen, den Typ (Benzin oder Dieselmotorkraftstoff) sowie den Isomerisierungsgrad ableiten.

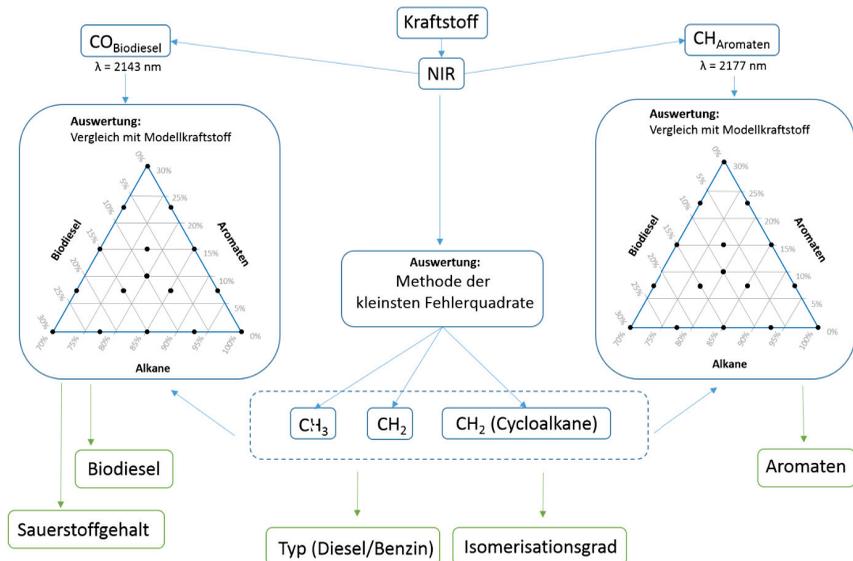


Abbildung 1: Auswerteverfahren der Sensordaten aus der Nahinfrarotspektroskopie basierend auf der Methode der kleinsten Quadrate und einem Vergleich der Absorptionsbanden bei 2143 und 2177 nm mit einem Modellkraftstoff im Simplex-lattice Versuchsaufbau.

2.2 Polarität und Kraftstoffalterung

Neben der Änderung der chemischen Zusammensetzung ändern sich während der Kraftstoffalterung die physikalischen Parameter wie Dichte, Viskosität und Permittivität. Die Permittivität kann mittels dielektrischer Relaxationsspektroskopie komplexwertig gemessen werden.

$$\epsilon_r(\omega, T) = \epsilon_r(\omega, T)' - j \times \epsilon_r(\omega, T)'' \quad (4)$$

Der Realteil ϵ_r' beschreibt den Einfluss der Orientierungspolarisation (nur bei Verbindungen mit permanentem Dipolmoment), Ionenpolarisation (nur bei ionischen Verbindungen), Elektronenpolarisation (zeigen alle Verbindungen) und Grenzflächenpolarisation. Die Debye-Gleichung korreliert die molekularen Größen der elektrischen Polarisierbarkeit und des permanenten Dipolmoments mit der makroskopisch messbaren Größe der Permittivität. Die Permittivität wird jedoch stark durch die Instabilität der Elektronenverteilung beeinflusst, welche durch die Elektronenpolarisation hervorgerufen wird. Dies bedeutet, dass bei Verbindungen, die eine Mesomeriestabilisierung (Benzol) oder eine Protolysereaktion eingehen (Wasser), die Permittivität nicht der Polarität entspricht. In allen anderen Fällen stellt die Permittivität ein Maß für die Polarität dar.

Tabelle 2: Relative Permittivität von Fluiden bei 100 kHz und 25 °C.

Medium	relative Permittivität	Medium	relative Permittivität
Premium Dieseldieselkraftstoff	2.15	Dieseldieselkraftstoff	2.21
Hydriertes Pflanzenöl (HVO)	2.05	Wasser	81.04
B20	2.30	Methanol	29.37
OME	4.09	Ethanol	22.34
Rapsölmethylester (RME)	3.26	UCOME	3.27

Der Imaginärteil ϵ'' , beschreibt die Polarisations- und Leitfähigkeitsverluste. Diese entstehen, wenn sich die Moleküle im Wechselfeld durch ihre Trägheit nicht mehr ausrichten können. Die Polarisationsverluste werden durch die Größe der Verbindungen beeinflusst. Je größer die Molekülmasse, desto größer wird die Trägheit der sich im Wechselfeld ausrichtenden Moleküle. Der Imaginärteil der Permittivität ermöglicht somit die Detektion der Bildung von höhermolekularen Verbindungen während der Alterung.

In Abbildung 2 sind der Real- und Imaginärteil der komplexen Permittivität von thermoxidativ gealtertem Biodiesel aus Altspesiefetten (UCOME) dargestellt. Nach der Induktionszeit von zehn Stunden kommt es durch die Autoxidation während der Alterung zu einem starken Anstieg der relativen Permittivität. Durch die Bildung von langkettigen Alterungsprodukten bei der Autoxidation des Kraftstoffs kann über den Imaginärteil der Permittivität die Alterung nach der Induktionszeit des Kraftstoffs erfasst werden.

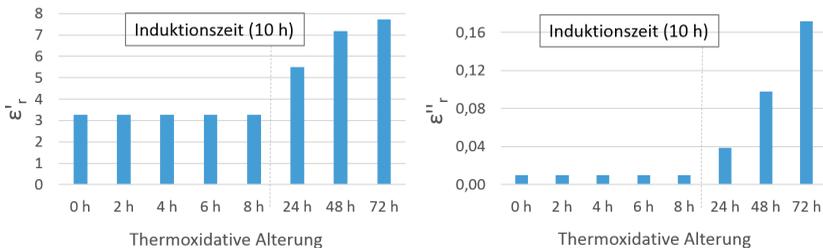


Abbildung 2: Realteile (links) und Imaginärteile (rechts) der Permittivitäten von thermoxidativ gealtertem UCOME bei 100 kHz und 25 °C (Alterung im Rancimat bei 110 °C).

Neben der Kraftstoffalterung kann durch die dielektrische Relaxationsspektroskopie auch eine Identifikation des Kraftstoffs anhand der Polarität erfolgen. Wie in Tabelle 2 aufgeführt, weisen die verschiedenen Kraftstoffe unterschiedliche relative Permittivitäten auf. Durch Kombination der Messdaten aus der Nahinfrarot-Spektroskopie (chemische Zusammensetzung) und der dielektrischen Relaxationsspektroskopie (Alterungsprodukte und Polarität) ist eine Zuordnung der Alterungszeit durch eine Zuordnung von geringen Änderungen der relativen Permittivität möglich (Abbildung 3).

Bei fortschreitender Alterung entstehen zunehmend langkettige und polare Alterungsprodukte, die je nach Polarität der Kraftstoffmatrix (Abbildung 3) aus der Lösung ausfallen können. Die im Tank gebildeten Sedimente können durch die Anbringung zweier

Sensoren im Tank detektiert werden. In Abbildung 4 ist die schematische Skizze eines Kanisters gezeigt, der den Kraftstofftank im Automobil nachempfinden soll. Ein Sensor wird am Boden des Kanisters angebracht und misst die relative Permittivität der auf den Kanisterboden sinkenden Sedimente. Ein zweiter Sensor weiter oben im Kanister misst die relative Permittivität der Kraftstoffmatrix. Die Größe der Differenz der relativen Permittivitäten beider Sensoren stellt folglich ein Maß für die Bildung von Sedimenten dar.

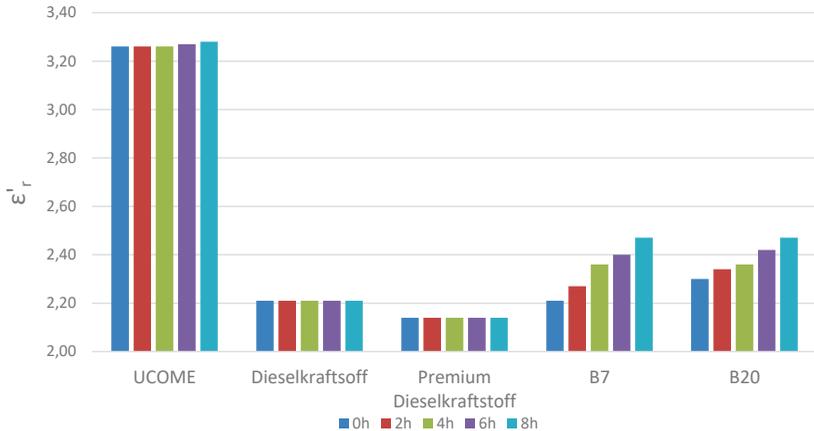


Abbildung 3: Relative Permittivitäten verschiedener Kraftstoffe, die bei 110° im Rancimat thermoxidativ gealtert wurden (Angabe der relativen Permittivität bei 100 kHz und 25 °C).

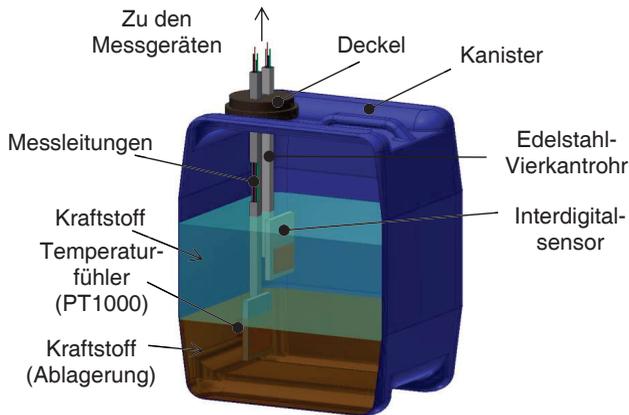


Abbildung 4: Schematischer Versuchsaufbau zur Bestimmung der Alterung und Sedimentation von Kraftstoffen.

2.3 Fluoreszenzspektroskopie zur Bestimmung von Kraftstoffadditiven

Die Fluoreszenzspektroskopie ergänzt die Nahinfrarotspektroskopie und die dielektrische Relaxationsspektroskopie durch die Möglichkeit zur Detektion kleinster Beimischungen, wie es Kraftstoffadditive darstellen. Antioxidantien im Additivpaket von Kraftstoffen beeinflussen maßgeblich das Alterungsverhalten von Kraftstoffen. Eine hohe Additivierung mit Antioxidantien bewirkt einen deutlichen Anstieg der Induktionszeit des Kraftstoffs. Um die Induktionszeit mit der Sensorik zu erfassen, stoßen die dielektrische Relaxationsspektroskopie und die Nahinfrarotspektroskopie an ihre Detektionsgrenzen.

Die Fluoreszenzspektroskopie kann die fluoreszierenden Verbindungen im ppm Bereich bestimmen. Während der thermoxidativen Alterung von Kraftstoffen werden die Antioxidantien verbraucht. Der Verbrauch bedingt eine Abnahme der Fluoreszenzintensität über den gesamten Alterungszeitraum, der von der Sensorik erfasst werden kann (Abbildung 5).

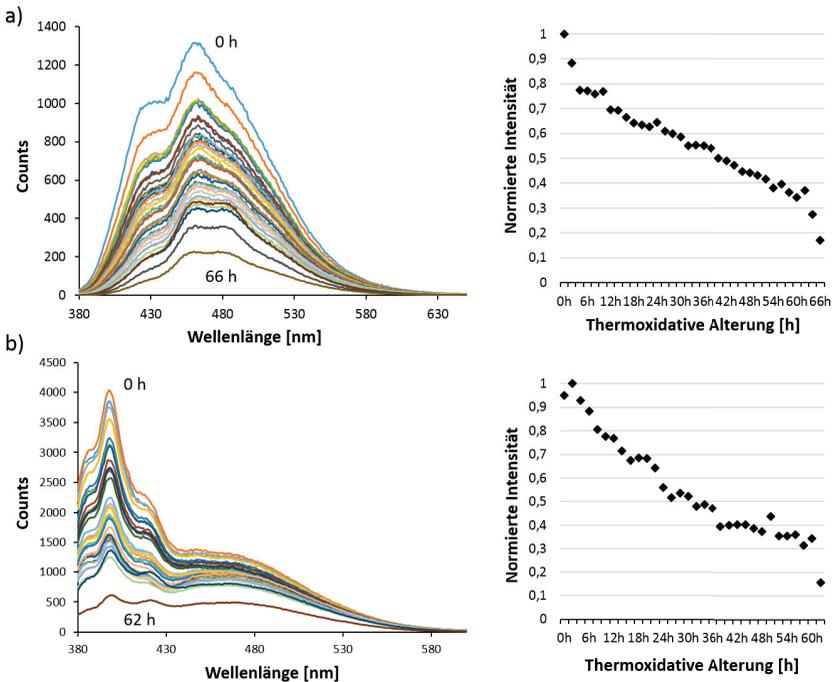


Abbildung 5: (a) Emissionsspektrum von Dieseldieselkraftstoff (oben links, $\lambda_{\text{Anregung}} = 370 \text{ nm}$) und die Abnahme der Fluoreszenzintensität bei der thermoxidativen Alterung von Dieseldieselkraftstoff bei einer Detektionswellenlänge von 465 nm (oben rechts, $\lambda_{\text{Anregung}} = 370 \text{ nm}$). (b) Emissionsspektrum von Premium Dieseldieselkraftstoff (unten links, $\lambda_{\text{Anregung}} = 370 \text{ nm}$) und die Abnahme der Fluoreszenzintensität bei der thermoxidativen Alterung von Premium Dieseldieselkraftstoff bei einer Detektionswellenlänge von 400 nm (unten rechts, $\lambda_{\text{Anregung}} = 370 \text{ nm}$).

Die normierte Emissionsintensität am Emissionsmaximum von Dieseldieselfkraftstoff und Premium Dieseldieselfkraftstoff in Abhängigkeit von der thermoxidativen Alterung zeigt einen kontinuierlichen Rückgang innerhalb der Induktionszeit. Über die Auswertung des Kurvenverlaufs der Fluoreszenz kann dadurch die Alterung ermittelt werden.

3 Entwicklung einer on-board Sensorik

Die unterschiedliche Zusammensetzung von Kraftstoffen innerhalb der DIN EN 590 und DIN EN 228, sowie die Gefahr der Kraftstoffalterung in Plug-in Hybriden stellen die Motivation dar, ein Sensorsystem zu entwickeln, das Zusammensetzung und Alterungsgrad erkennen kann.

In Abbildung 6 sind unterschiedliche patentierte Anwendungsmöglichkeiten der Sensoren im Automobil aufgezeigt. Die Integration eines optischen Sensors im Tankstutzen kann vor Falschbetankung warnen. Der dielektrische Sensor kann im Tank und oder in der Kraftstoffzuleitung in Kombination mit einem optischen Sensor die Kraftstoffparameter detektieren, mit denen das Motormanagement angepasst und Emissionen reduziert werden können.

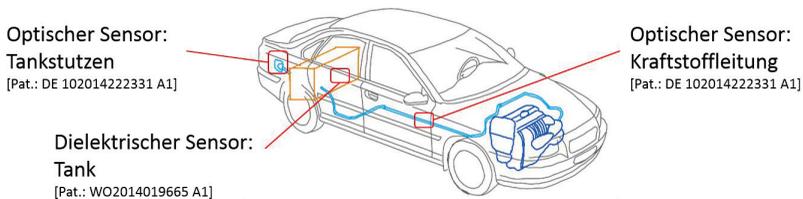


Abbildung 6: Unterschiedliche patentierte Anwendungsmöglichkeiten der on-board Sensoren.

Durch die Kombination der Nahinfrarotspektroskopie, der dielektrischen Relaxationspektroskopie und der Fluoreszenzspektroskopie können die Kraftstoffparameter wie Aromatengehalt, Biodieselfgehalt, CH₃- und CH₂-Anteile, Cycloalkangehalt, Permittivität (Maß für die Polarität) sowie die Alterung von Kraftstoffen detektiert werden. Basierend auf den theoretischen Auswertungen sieht das weitere Vorgehen die Ausarbeitung einer softwarebasierten Automatisierung der Sensordaten und den Aufbau eines Prototyps zur simultanen Messung des Nahinfrarotspektrums, der Permittivität und der Fluoreszenz vor.



Literaturverzeichnis

- [1] M. Winkler, Propulsion for 2025, Hyundai Motor Europe Technical Center GmbH, Tagungsband: Motorenkongress, Baden-Baden, **2017**.
- [2] H. Wallentowitz, A. Freialdenhoven, I. Olschewski, Strategien zur Elektrifizierung des Antriebstranges: Technologien, Märkte und Implikationen. Vieweg+Teubner Verlag / GWV Fachverlage GmbH Wiesbaden, Wiesbaden, **2010**.
- [3] K. Naumann, K. Oehmichen, M. Zeymer, F. Müller-Langer, M. Scheftelowitz, P. Adler, K. Meisel, M. Seiffert, DBFZ Report Nr. 11. Monitoring Biokraftstoffsektor, Leipzig, **2016**.
- [4] K. Götz, S. Zickmann, B. Fey, J. Bünger, W. Stapf, Z. Fan, T. Garbe, A. Munack, J. Krahl, „Diesel R33“, Cuvillier Verlag, **2015**.
- [5] H. Liu, Z. Wang, J. Wang, X. He, Y. Zheng, Q. Tang, Energy, **2015**, 88, 793–800.
- [6] A. Janssen, M. Jakob, M. Mütter, S. Pischinger, MTZ, **2012**, 71, 922–928.
- [7] M. P. Walsh, Front. Environ. Sci. Eng. **2014**, 8, 1–17.
- [8] J. Krahl, A. Munack, M. Bahadir, L. Schumacher, N. Elser, **1996**, SAE Paper 962096.
- [9] A. Monyem, J. Van Gerpen, M. Canakci, American Society of Agricultural Engineers, **2001**, 44, 35–42.
- [10] A. Monyem, J. Van Gerpen, Biomass and Bioenergy, **2001**, 20, 317–325.

Untersuchungen zum Klopfverhalten von LNG

Peter Eilts, S. Vallabhuni, L. Klare, K. Moshhammer

Abstract

Liquefied Natural Gas (LNG) is a fuel that is under increasing discussion for transport purposes. It differs from CNG because it often has a higher concentration of hydrocarbons $> C_4$. This affects knocking in a negative way. The knocking propensity of gases is characterized by the Methane Number or, if an arbitrary engine is used, by the Service Methane Number (SMN). For a set of LNGs the SMNs are measured on two test engines. Different approaches to measure the SMN are investigated. Further, several calculation methods are compared with the measurements. To get chemical information about the knocking propensity of the LNGs, ignition delay time measurements are performed with a Rapid Compression Machine (RCM) and further compared with simulations from two widely validated kinetic models.

1 Einführung

Verflüssigtes Erdgas (LNG, *Liquefied Natural Gas*) ist zu einer weltweit wichtigen Energieressource geworden. Sein Einsatz als sauberer und umweltschonender Kraftstoff in Fahrzeugen rückt dabei immer mehr in den Fokus der Öffentlichkeit. Die Zusammensetzung von LNG ist teilweise stark von seiner Herkunft abhängig. Es enthält mitunter, im Unterschied zum CNG (*Compressed Natural Gas*), nennenswerte Konzentrationen an höheren Kohlenwasserstoffen ($>C_4$). Diese beeinflussen das Klopfverhalten im Motor negativ.

Die Klopf Eigenschaften von Gasen werden mittels der Methanzahl (MZ) charakterisiert. Sie ist über den Methangehalt in einem Gasgemisch aus Methan und Wasserstoff definiert, das in einem definierten Prüfmotor unter definierten Betriebsbedingungen dasselbe Klopfverhalten zeigt wie das zu untersuchende Gas. Die MZ von Methan beträgt 100, für Wasserstoff ist sie 0. Es gibt verschiedene Methoden, die MZ aus der Gaszusammensetzung zu bestimmen. Leider können diese erheblich differierende Resultate liefern.

Die MZ wurde von der AVL in einem großen FVV-Projekt definiert [1] [2]. Der gemessene Wert der MZ hängt vom Prüfmotor und den Betriebsbedingungen ab. Leider steht das von der AVL verwendete Equipment nicht mehr zur Verfügung. Das bedeutet, dass „die“ MZ entsprechend der ursprünglichen Definition nicht mehr gemessen werden kann.

Eine MZ kann aber auch in jedem beliebigen anderen Motor oder unter anderen Betriebsbedingungen gemessen werden. Um das Ergebnis von der im CFR/RDH-Motor, der als Prüfmotor verwendet wurde, unter Referenzbedingungen gemessenen MZ zu

unterscheiden, wurde von der AVL der Begriff „Betriebsmethanzahl“ (BMZ) eingeführt [1] [2]. Diese ist wie die MZ definiert, aber sie wird in einem beliebigen Prüfmotor unter beliebigen Betriebsbedingungen gemessen. Für Gemische aus Methan und Wasserstoff ist die BMZ äquivalent zur MZ

Neuere Ansätze versuchen die Methanzahl auf Basis von Simulationen des Selbstzündungsprozesses mit Hilfe chemischer Modelle zu berechnen [3]. Denn die Zusammensetzung der LNG-Mischungen hat eine direkte Auswirkung auf die ablaufenden chemischen Reaktionen während der Zündung und bestimmt somit maßgeblich die Klopfintensität. Chemische Informationen über das Klopfverhalten von Gasen können u.a. mit Hilfe von Laborexperimenten, die für die Untersuchung der chemischen Kinetik von Selbstzündungsprozessen geeignet sind, untersucht werden. Rapid Compression Machines eignen sich hierbei insbesondere, um Selbstzündungsprozesse von Gasen unter motorähnlichen Bedingungen (hoher Druck, mittelhoher Temperaturbereich) zu untersuchen. Die gewonnenen Daten können zudem zur Validierung und Entwicklung von kinetischen Reaktionsmechanismen herangezogen werden.

2 Experimentelle Vorgehensweise

2.1 Motorexperimente

Die Versuche wurden an zwei Einzylinder-Viertaktmotoren mit 600 (Motor 1) und 200 (Motor 2) cm³ Hubvolumen durchgeführt. Beide waren ursprünglich direkteinspritzende Benzinmotoren und wurden auf Gasbetrieb mit Saugrohrreinblasung umgerüstet. Die Motoren wurden stöchiometrisch betrieben.

Die Zylinderdrücke wurden mit piezoelektrischen wassergekühlten Sensoren gemessen. Die Datenanalyse wurde mit einer Kistler KiBox durchgeführt. Zur Analyse des Klopfverhaltens wurde der VDO-Algorithmus [4] verwendet, der in der KiBox implementiert ist [5].

Die Versuchsmotoren haben kein variables Verdichtungsverhältnis. Daher mussten andere Parameter variiert werden, um Klopfen herbeizuführen. Drei verschiedene Ansätze wurden untersucht, um die Abhängigkeit der BMZ von den Betriebsbedingungen zu berücksichtigen:

- Klopfbegrenzter Ladedruck p_L als Maß für die Klopfintensität (p_L -BMZ)
- Klopfbegrenzter indizierter Mitteldruck (p_{mi} -BMZ)
- Klopfbegrenzte Schwerpunktlage (HV50-BMZ)

Es wurden 11 Gase untersucht. Davon basierten 8 auf typischen LNG-Zusammensetzungen. Die übrigen 3 waren ternäre Gemische aus Methan, iso- und n-Pentan. Weiterhin standen 5 Referenzgase mit 40, 30, 20, 10 und 0 % Wasserstoff in Methan zur Verfügung, entsprechend Methanzahlen von 60, 70, 80, 90 und 100. Tabelle 1 zeigt die Zusammensetzung der untersuchten Gase.

Tabelle 1: Zusammensetzung der untersuchten Gase in Mol%

Mixture	Description	CH4	C2H6	C3H8	n-C4H10	i-C4H10	n-C5H12	i-C5H12	N2
1		79.128	13.757	3.337	0.883	1.090	0.149	0.149	1.507
2	Emirates	84.636	12.797	1.495	0.210	0.218	0.031	0.020	0.594
3	Norway	91.800	5.700	1.300	0.150	0.170	0.040	0.040	0.800
4	Libya	81.845	13.243	3.653	0.270	0.280	0.010	0.010	0.688
5	Oman	87.948	7.227	2.917	0.709	0.650	0.099	0.110	0.340
6	AVL 6	95.251	1.997	1.000	0.302	0.299	0.022	0.025	1.104
7		97.869	1.001	0.502	0.212	0.182	0.016	0.018	0.200
8	Alaska	99.679	0.090	0.030	0.010	0.010	0.005	0.005	0.170
9	Pentane test 1	99.360					0.307	0.302	
10	Pentane test 2	99.530					0.206	0.199	
11	Pentane test 3	99.680					0.100	0.100	

2.2 Rapid Compression Machine-Experimente

Die Bestimmung der Zündverzugszeiten erfolgte mittels einer Rapid Compression Machine (RCM). Die verwendete RCM ist eine Einzelkolben-Version, die ein Dreikammersystem (Pneumatik-, Hydraulik- und Reaktionskammer) umfasst. Sie wird pneumatisch angetrieben und hydraulisch abgebremst. Die Reaktionskammer, in der das Gasgemisch (im Allgemeinen ein Gemisch aus Brennstoff/Sauerstoff/Argon/Stickstoff) mittels Kolben komprimiert wird, weist einen Innendurchmesser von 50 mm auf und besitzt 6 Zugänge für Drucksensoren und Gaseinlass und -auslass. Das Design ermöglicht Experimente bis zu einem Druck von 200 bar in einem Temperaturbereich von 600 bis 1100 K.

Um die Zündverzugszeiten für unterschiedliche Temperaturen zu messen, wurde die initiale Temperatur der Gasgemischen im nicht komprimierten Zustand im Bereich von 296-380 K mittels Heizbändern variiert. Die Temperatur des Gasgemisches in der Reaktionskammer wurde jeweils vor der Messung durch ein Pt-Rh-Thermoelement in der Wand der Kammer bestimmt. Die Druck-Zeit-Kurven wurden mit Hilfe eines Kistler (601H) Druckaufnehmers, der mit einem Ladungsverstärker (Typ 5018) gekoppelt war, aufgenommen und über einen computergesteuerten Transientenrekorder (Spectrum Data Aquisition Card M2i.3016-Exp) digitalisiert.

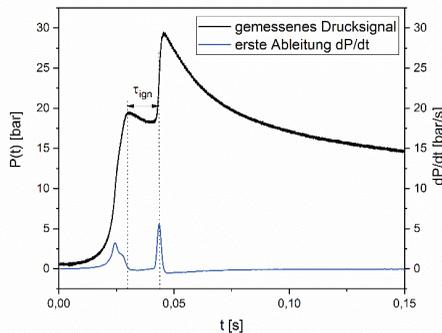


Abbildung 1: Typischer Druck-Zeit-Verlauf für ein RCM-Experiment. Die Zündverzugszeit t_{ign} ist definiert als die Zeit zwischen Ende der Kompressionsphase (erste Ableitung wird Null) und dem Einsetzen der Zündung (erste Ableitung wird maximal).

Abbildung 1 zeigt eine typische Messkurve aus einem RCM-Experiment. Der zu verzeichnende erste Druckanstieg erfolgt aufgrund der Kompression des Gasgemisches. Der anschließende leichte Abfall des Drucks ist auf Wärmeverluste an die umgebenden Wände der Reaktionskammer zurückzuführen. Die Zündung des Gemisches zeigt sich durch einen zweiten starken Anstieg im Druckprofil. Die Zeit zwischen Ende der Kompression und dem Einsetzen der Zündung wird als Zündverzugszeit bezeichnet.

Zündverzugszeiten wurden für eine Auswahl der in Tabelle 1 gelisteten Gase gemessen (Mischung 1-7 und 6 Referenzgase mit 100% Methan, 100% Wasserstoff sowie 40, 30, 20 und 10% Wasserstoff in Methan). Die Untersuchungen wurden bei Kompressionsdrücken von 20 und 40 bar für Verbrennungsluftverhältnisse von $\lambda=2,5$ ($\Phi=0,4$) und $\lambda=0,8$ ($\Phi=1,2$) durchgeführt. Zur Fehlerminimierung wurde jede Messung unter identischen Bedingungen mindestens dreimal wiederholt.

Korrespondierende chemisch-kinetische Modellierungen wurden mit Hilfe der Chemkin-Pro-Software [6] durchgeführt, wobei Volumenprofile (generiert aus Messungen von nicht-reaktiven Mischungen) als Input verwendet wurden um die Wärmeverluste innerhalb der RCM zu berücksichtigen. Zwei unterschiedliche kinetische Mechanismen wurden für die Modellierungen verwendet, der *n*-Heptan-Mechanismus des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL-Mechanismus) [7] und der *n*-Hexan-Mechanismus der NUI Galway (NUIG-Mechanismus) [8].

3 Ergebnisse

Die MZ wurde mit den folgenden Algorithmen berechnet: DGC [9], NPL [10], MWM [11], PKI [12], GRI-linear [13], Wärtsilä [14] und Cummins [15].

Im Weiteren werden die mit den verschiedenen Methoden gemessenen BMZ mit den MZ verglichen, die mit den oben genannten Algorithmen berechnet worden sind. Weil die BMZ vom Motor und den Randbedingungen abhängt, ist ein Vergleich immer nur für einen Motor und einen Satz Randbedingungen möglich. Ein vollständiges Bild entsteht, wenn alle Vergleiche zusammengefügt werden.

In den Abbildungen 2 bis 4 sind für Motor 1 die p_L -BMZ und die p_{mi} -BZ für HV50 = 14 °KW sowie die HV50-BMZ der mittels der MWM-Methode errechneten MZ gegenübergestellt.

Wie erwartet weichen die Werte der BMZ von den errechneten MZ ab. Die Steigung der Regressionsgeraden unterscheidet sich auch von Fall zu Fall. Auf der anderen Seite sind es fast immer dieselben Gase, die oberhalb oder unterhalb der Regressionsgeraden liegen. Die Trends sind also die gleichen, unabhängig von der Methode, mit der die BMZ bestimmt wird.

Für andere Werte der Schwerpunktlage und für Motor 2 unterscheiden sich die absoluten Werte und die Steigungen der Regressionsgeraden von den oben gezeigten Ergebnissen, aber in allen Fällen sind die Trends die gleichen.

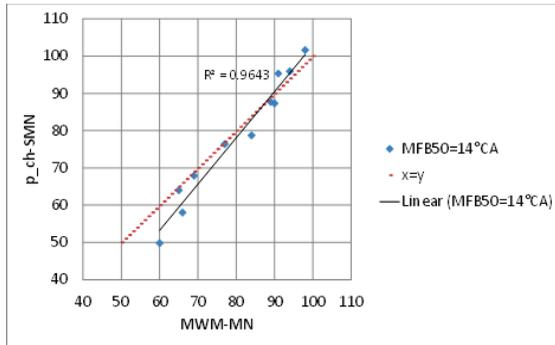


Abbildung 2: p_L -BMZ vs. MWM-MZ, Motor 1, HV50 = 14 °KW

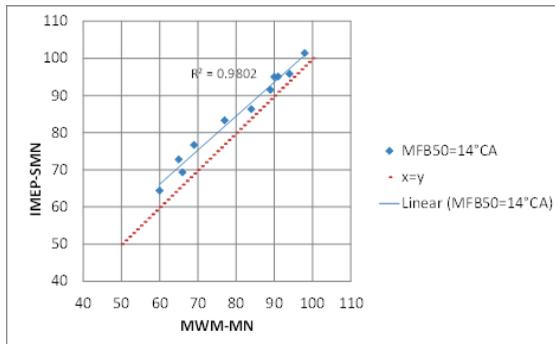


Abbildung 3: p_{mi} -BMZ vs. MWM-MZ, Motor 1, HV50 = 14 °KW

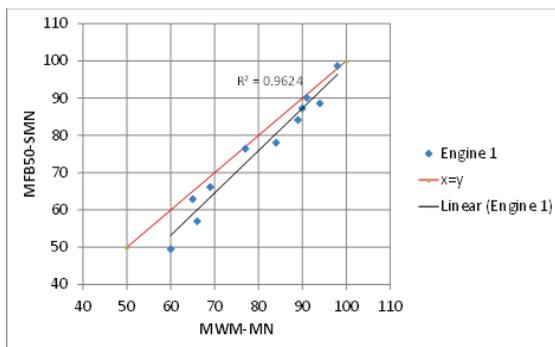


Abbildung 4: HV50-BMZ vs. MWM-MZ, Motor 1, $p_L = 1,3$ bar

In den Abbildungen 5 bis 9 sind für Motor 1 die pL-BMZ für HV50 = 10 °KW über den MZ aufgetragen, die mit der NPL-, PKI-, GRI-linear-, Wärtzilä- und Cummins-Methode berechnet wurden. Die Ergebnisse mit der DGC- und der MWM-Methode sind sehr ähnlich zu den mit dem NPL-Algorithmus bestimmten, weil alle auf den ursprünglichen AVL-Daten basieren.

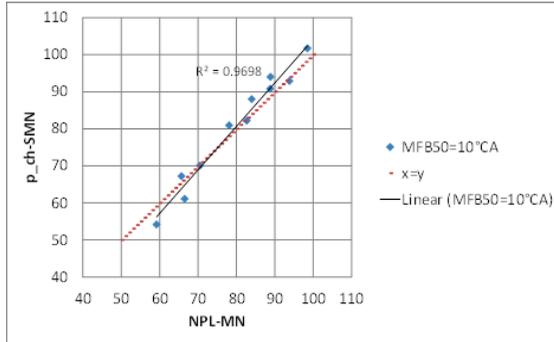


Abbildung 5: pL-BMZ vs. NPL-MZ, Motor 1, HV50 = 10 °KW

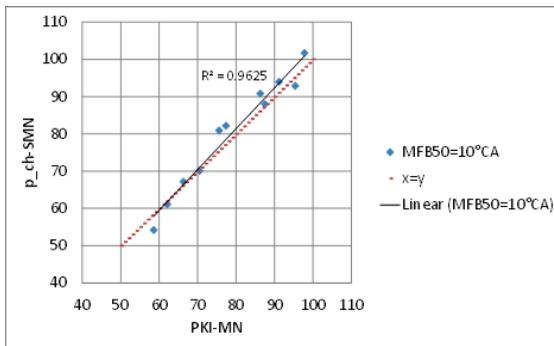


Abbildung 6: pL-BMZ vs. PKI-MZ, Motor 1, HV50 = 10 °KW

Auch hier unterscheiden sich die absoluten Werte und die Steigungen der Regressionsgeraden, aber nun resultiert das aus den unterschiedlichen Berechnungsmethoden. Weiterhin sind erhebliche Unterschiede in den Bestimmtheitsmaßen sichtbar.

Der NPL-Algorithmus zeigt insgesamt gute Ergebnisse, aber relativ große Abweichungen im Bereich niedriger MZ. Das Bestimmtheitsmaß, das mit der PKI-Methode erreicht wird, ist ähnlich wie beim NPL- und den anderen AVL-basierten Algorithmen. Die Wärtzilä-Methode liefert im hier gezeigten Beispiel noch bessere Resultate. Interessanterweise sind die Abweichungen im Bereich niedriger MZ bei diesen beiden Methoden niedriger als bei den AVL-basierten.

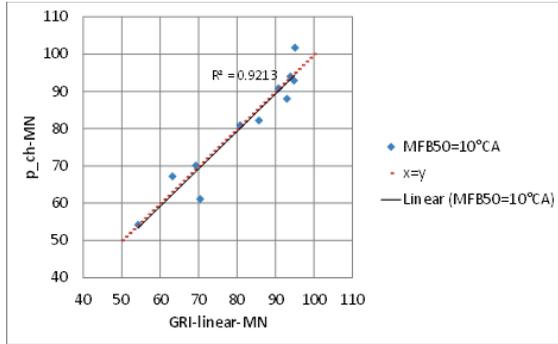


Abbildung 7: pL-BMZ vs. GRI-linear-MZ, Motor 1, HV50 = 10 °KW

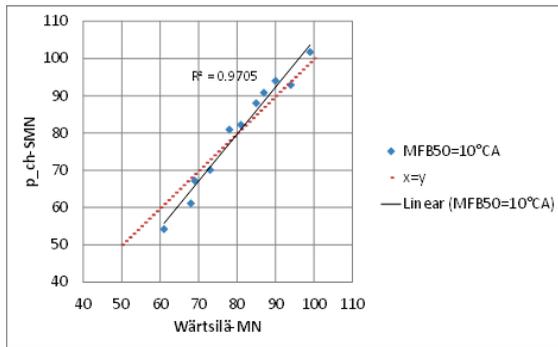


Abbildung 8: pL-BMZ vs. Wärtsilä-MZ, Motor 1, HV50 = 10 °KW

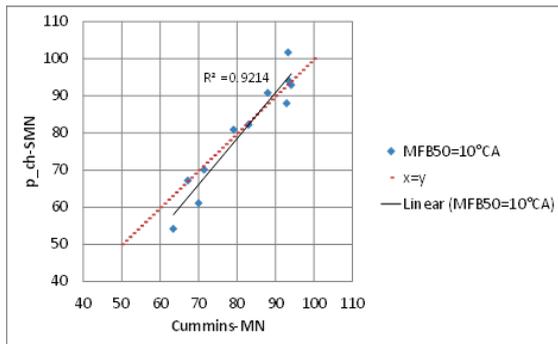


Abbildung 9: pL-BMZ vs. Cummins-MZ, Motor 1, HV50 = 10 °KW

Der GRI-linear- und der Cummins-Algorithmus erreichen niedrigere Bestimmtheitsmaße. Sie zeigen nicht nur bei niedrigen, sondern auch bei hohen MZ relativ große Abweichungen von der Regressionsgeraden.

Die Ergebnisse für die Messungen und Modellierungen der Zündverzugszeiten sind in Abbildung 10 dargestellt.

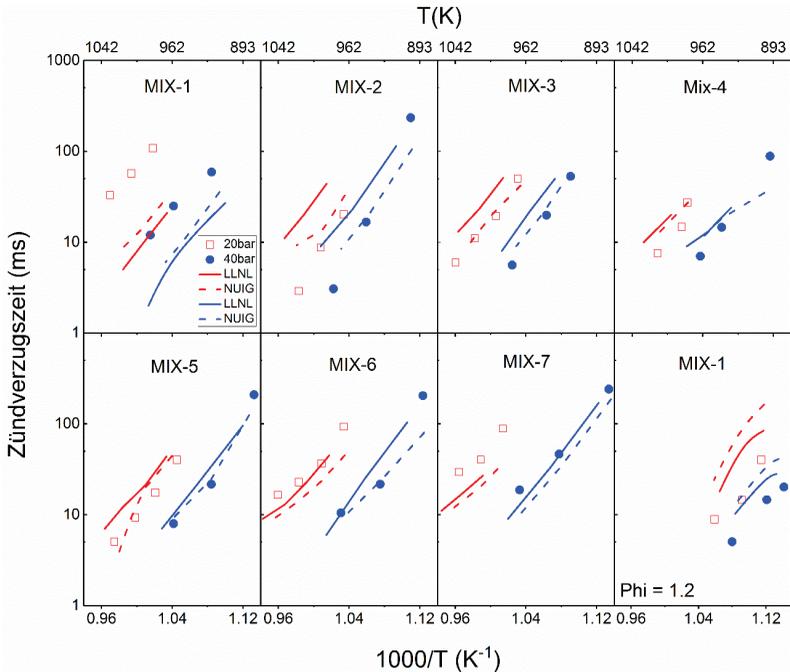


Abbildung 10: Gemessene und modellierte Zündverzugszeiten

Für die experimentellen Daten ist beobachtbar, dass mit zunehmendem Druck die LNG-Mischungen erwartungsgemäß kürzere Zündverzugszeiten aufweisen, was auf eine erhöhte Reaktivität zurückzuführen ist. Die Daten zeigen aber auch, dass eine Erhöhung des Drucks zu Selbstzündungen bei wesentlich niedrigeren Temperaturen führt.

Bei den Modellierungen zeigt sich, dass es manche Mischungen gibt, bei denen die Simulationen die experimentellen Daten deutlich besser wiedergeben können als für manche andere. Insbesondere für Mischungen mit hohem Ethananteil (Mischungen 1, 2 und 4 [der Übersichtlichkeit halber hier nicht gezeigt]) treten starke Abweichungen auf. Abhängig vom gewählten Mechanismus zeigen sich zudem teilweise recht unterschiedliche Modellvorhersagen. Durchgeführte Sensitivitätsanalysen legen nahe, dass bei den Mischungen mit starken Abweichungen zwischen Experiment und Simulation

die Bedeutung der C₂-Chemie stark zunimmt und eine Revision der Reaktionsraten im intermediären Temperaturbereich notwendig zu sein scheint.

Um wichtige Erkenntnisse über den Zusammenhang zwischen der Methanzahl und der Zündverzugszeit zu gewinnen, wurde ein Vergleich der gemessenen Zündverzugszeiten für die LNG- und den Referenzmischungen in Abhängigkeit zu ihrer durch den MWM-Algorithmus berechneten Methanzahl durchgeführt. Abbildung 11 illustriert die erhaltenen Ergebnisse für die Messungen im Temperaturbereich zwischen 980 und 1010 K bei einem Druck von 20 bar und einem Verbrennungsluftverhältnis von $\lambda=2,5$.

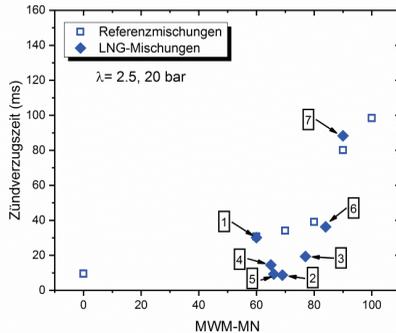


Abbildung 11: Gemessene Zündverzugszeiten für die Referenzgas- (offene Symbole) und LNG-Mischungen (geschlossene Symbole) als Funktion der Methanzahl (bestimmt mit dem MWM-Algorithmus).

Für die Referenzgasmischungen aus Methan und Wasserstoff (offene Symbole) zeigt sich erwartungsgemäß, dass mit steigender MZ die Zündverzugszeit ansteigt. Allerdings zeigt sich für die LNG-Mischungen ein abweichendes Verhalten insbesondere im Bereich von Gasgemischen mit Methanzahlen zwischen 65 und 75. Für diese Mischungen (Mischung 2-5) wurden wesentlich kürzere Zündverzugszeiten im Vergleich zur jeweiligen Referenzgasmischung gemessen. Diese Abweichungen konnten in den Motorexperimenten nicht nachgewiesen werden, was darauf hindeutet, dass die Wahl der physikalischen und chemischen Umgebungsbedingungen einen großen Einfluss auf die reale Klopfestigkeit (bzw. den Zündverzug) eines Gases hat.

Neben der bereits oben diskutierten C₂-Chemie wird die Zündverzugszeit und damit die Klopfestigkeit auch vom Anteil höherer Kohlenwasserstoffe beeinflusst. Anhand Abbildung 11 wird deutlich, dass der Propananteil in der Mischung mit der Zündverzugszeit korreliert. Mit Ausnahme von Mischung 1 und 4, die beide einen sehr hohen Ethananteil besitzen, kann beobachtet werden, dass die Zündverzugszeit mit zunehmendem Anteil an Propan abnimmt.

Zusammenfassung

Für 11 Gase wurden an zwei stöchiometrisch betriebenen Einzylinder-Versuchsmotoren mit 200 und 600 cm³ Hubvolumen mit drei klopfbegrenzten Parametern (Lade-

druck, indizierter Mitteldruck und Schwerpunktlage) BMZ ermittelt. Die Ergebnisse wurden mit 7 Berechnungsmethoden für die MZ verglichen.

Grundsätzlich kann festgehalten werden, dass die berechneten MZ auch für die modernen in dieser Arbeit verwendeten Motoren mit den gemessenen BMZ korrelieren. In allen Fällen zeigen die gemessenen BMZ wie erwartet andere absolute Werte, aber die gleichen Tendenzen wie die berechneten MZ.

Die Qualität der Korrelation zwischen Berechnung und Messung ist für die verschiedenen Berechnungsmethoden unterschiedlich. Der NPL-, der DGC- und der MWM-Algorithmus, die auf den AVL-Daten basieren, zeigen insgesamt hohe Bestimmtheitsmaße. Die PKI- und die Wärsilä-Methode erzielen ähnliche Ergebnisse. Die letzteren liefern im Bereich niedriger MZ eine bessere Übereinstimmung. Die mit der Cummins- und der GRI-Methode erzielten Resultate sind schlechter.

Für sieben LNG-typische Gasmischungen wurden mit Hilfe einer Rapid Compression Machine Zündverzugszeiten bei zwei unterschiedlichen Drücken (20 und 40 bar) und für zwei unterschiedliche Luftverhältnisse ($\lambda=2,5$ und $\lambda=0,8$) über einen Temperaturbereich von 960-1030 K gemessen. Dabei konnte unter anderem festgestellt werden, dass eine Erhöhung des Drucks zu einer Verschiebung der Zündung zu niedrigeren Temperaturen führt, d.h. dass die Reaktivität der Gemische mit höherem Druck ansteigt.

Korrespondierende Modellrechnungen mit zwei unterschiedlichen kinetischen Reaktionsmechanismen (LLNL und NUIG) haben gezeigt, dass insbesondere die Simulationen für Mischungen mit hohem Ethangehalt noch keine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten aufweisen und dass die Reaktionsraten für die relevante C₂-Chemie im Bereich hoher Drücke revidiert werden sollten.

Im Vergleich zu Zündverzugszeiten entsprechender Referenzgase aus Methan und Wasserstoff hat sich gezeigt, dass für LNG-Gasmischungen mit MWM-Methanzahlen zwischen 65 und 75 deutlich niedrigere Zündverzugszeiten als für entsprechende Methan-Wasserstoff-Mischungen erhalten werden.

Literatur

- [1] Leiker, M., Cartellieri, W., Christoph, K., Pfeifer, U. et al., "Evaluation of Anti-knocking Property of Gaseous Fuels by Means of Methane Number and its Practical Application to Gas Engines," ASME-paper 72-DGP-4, 1972.
- [2] Cartellieri, W. und Pfeifer, U., "Erweiterung der Energieerzeugung durch Kraftgase," Forschungsberichte Verbrennungskraftmaschinen, Heft 120, Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen, Frankfurt/Main, 1971.
- [3] Gersen S, Essen M, Levinsky H, Dijk G., "Characterizing gaseous fuels for their knock resistance based on the chemical and physical properties of the fuel.," SAE Int J Fuels Lubr 2016;9(1):1–13.
- [4] Scharlipp, S. and Urban, L., "Methan-Kraftstoffe und Kennzahlen," Forschungsberichte Verbrennungskraftmaschinen, Heft 1096, Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen, Frankfurt/Main, 2016.



- [5] "Betriebsanleitung KiBox To Go Typ 2893A..., KiBox Cockpit Version 2.0," Kistler document 2893A_002-437d-04.14, 2014.
- [6] CHEMKIN-PRO 15131, Reaction Design: San Diego, 2013.
- [7] Mehl M, Pitz WJ, Westbrook CK, Curran HJ., "Kinetic modeling of gasoline surrogate components and mixtures under engine conditions.," Proc Combust Inst 2011;33:193–200.
- [8] Zhang K, Banyon C, Togbé C, Dagaut P, Bugler J, Curran HJ. An experimental and kinetic modeling study of n-hexane oxidation. Combust Flame 2015;162(11):4194–207.
- [9] Andersen, P., "Algorithm for Methane Number Determination for Natural Gases," Danish Gas Technology Centre, Horsholm, 1999.
- [10] Giesecking, B. and Brown, A., "Novel Algorithm for Calculating the Methane Number of Liquefied Natural Gas with Defined Uncertainty," Fuel 185 (2016) 932-940.
- [11] "Euromot MWM MN Programme," http://www.euromot.eu/media_and_events/publications/mn , Euromot, 2017.
- [12] "PKI Methane Number Calculator for LNG," <https://pkicalculator.dnvgl.com/> , DNV GL, 2017.
- [13] Kubesh, J., King, S. R. and Liss, W. E., "Effect of Gas Composition on Octane Number of Natural Gas Fuels," SAE Technical Paper 922359, 1992.
- [14] "Wärtsilä Methane Number Calculator," <https://www.wartsila.com/products/marine-oil-gas/gas-solutions/methane-number-calculator> , Wärtsilä, 2017.
- [15] "Fuel Quality Calculator," <http://www.cumminswestport.com/fuel-quality-calculator> , Cummins Westport, 2017.

GKI-Verfahren zur Bestimmung der Klopfestigkeit mit wesentlichen Funktionserweiterungen

Johann Hauber, K. Huber, R. Nell

Abstract

The knock resistance of gasoline fuels is the most important property in terms of their thermodynamic qualification being used in SI engines. Desirably high values of knock resistance are key enablers for combustion modes with elevated efficiency, and thus the knock resistance can be linked directly to the fuel consumption potential. It describes the likelihood of a fuel / air-mixture in the combustion chamber to resist against self-ignition due to high temperatures and pressure, but waiting for the flame propagation being initialized by the spark plug.

There are two standardized, engine-based test methods commonly used worldwide to describe this property, which are focused on different engine test conditions: the Research Octane Number (RON) and the Motor Octane Number (MON). The roots of both test methods have been set in the 1930s, while the test equipment was subjected to participate only slightly on technical development and the procedures remained almost unaffected from changing requirements either caused by fuel diversification or engine technology.

The focus of the presented content is the description of a comprehensively modernized engine-based test procedure for improved comparability between the so-called Gasoline Knock Index (GKI) and the resulting response behavior in modern SI engines. It recalls the claimed rating method from Sir Harry Ricardo, which was based on the highest useful compression ratio of a gasoline. It is combined with state-of-the-art technologies such as lambda control for stoichiometric combustion strategy, an advanced port fuel injection system that uses fuel's heat of vaporization extensively and a cylinder pressure pattern based knock detection and rating system, which is integrated in an electronic data acquisition and processing unit.

The test engine being used in the GKI procedure at an engine speed of 600 min^{-1} is a substantially modified CFR engine, which is typically used for RON determination. As GKI is not a standard up to now, test laboratories would favor to have a dual mode test engine available, that could be used for RON measurements with its modified equipment, as well. Development stages for covering the RON acquisition by extended functions of the GKI engine setup and results from round robin tests are thereof presented in a separate chapter.

1 Einleitung

Die Klopfestigkeit von Ottokraftstoffen stellt hinsichtlich der thermodynamischen Eigenschaften beim Verbrennungsprozess die wichtigste Kenngröße dar. Dementsprechend wirken sich hohe Klopfestigkeitswerte als eine Schlüsselfunktion für innermo-

torische Wirkungsgradsteigerungen aus, indem solche Kraftstoffe den hohen Brennraumtemperaturen und -Drücken länger widerstehen, ehe es zu Selbstzündereignissen mit den charakteristischen Klopfdruckschwingungen im Zylinder kommt.

Die Klopfestigkeit wird nach heutigem Stand mittels zweier motorischer Prüfverfahren in genormten CFR-Einzylinderprüfmotoren (Cooperative Fuels Research) bestimmt, wobei sich die Betriebsbedingungen zwischen dem Research- und dem Motor-Oktananzahlverfahren (RON, MON) maßgeblich unterscheiden [1-3]. Die Entwicklung dieser beiden Verfahren fand im Wesentlichen in den 1930er Jahren statt, wobei einzelne Verbesserungen in Bezug auf die messtechnische Ausstattung umgesetzt wurden und die Prüfverfahren anteilig von Technologieentwicklungen profitieren konnten [4-6]. Den Verfahren selbst blieben Modifikationen vorenthalten, wodurch kraftstoffinduzierte Veränderungen und brennverfahrensspezifische Entwicklungen zu einer eingeschränkten Übertragbarkeit der Oktanzahlen auf heutige Anwendungsfälle führen können.

Im Rahmen dieses Beitrags wird ein umfassend modernisiertes motorisches Prüfverfahren vorgestellt, das auf einem Einzylinder-CFR-Prüfmotor basiert, wobei das GKI-Verfahren (Gasoline Knock Index) auf jene Verbesserung der Übertragbarkeit hin entwickelt wurde. Es greift den ursprünglich von Sir Harry Ricardo postulierten Verfahrensansatz des maximal erträglichen Verdichtungsverhältnisses ε als charakteristische Kennzahl für die Klopfestigkeit wieder auf [6]. Zeitgemäße Technologien wurden in das Prüfverfahren integriert wie zum Beispiel eine lamdageregelte, stöchiometrische Gemischzusammensetzung, eine saughubsynchron angesteuerte Saugrohrein-spritzung für eine möglichst umfassende Ausnutzung der Verdampfungsenthalpie (Gemischinnenkühlung), sowie eine echtzeitfähige Datenerfassung und -Verarbeitung mit integrierter zylinderdruckbasierter Klopferkennung und -Bewertung [7,8].

Nachdem der CFR-Prüfmotor für die GKI-Bestimmung bei 600 min^{-1} umfangreich modifiziert wurde, stünde dieser ohne entsprechende Rückrüstungen für konventionelle RON-Messungen nicht zur Verfügung, was allerdings aufgrund der bislang fehlenden Normung für das GKI-Verfahren wünschenswert erscheint. Die Entwicklungsschritte, die zu einem zusätzlichen Betriebsmodus für eine RON-Bestimmung an einem GKI-Prüfmotor ohne mechanische Umbaumaßnahmen geführt haben, werden schließlich zusammen mit Ergebnissen von Ringversuchen in einem gesonderten Kapitel dargestellt.

2 Das GKI-Prüfverfahren

Das Prüfverfahren zur Ermittlung des Gasoline Knock Index (GKI) nutzt den zur Kraftstoffprüfung in zahlreichen Analyselaboren weltweit eingesetzten CFR-Einzylinder-Prüfmotor [9], wobei die mechanische Robustheit des Motors sowie das im Betrieb kontinuierlich verstellbare Verdichtungsverhältnis neben seinem Verbreitungsgrad ausschlaggebend waren. Die technischen Modifikationen umfassen den Einsatz einer elektronischen Motorsteuerung zur Verarbeitung der relevanten Messgrößen und der Ansteuerung der zugehörigen elektrifizierten Aktuatoren, wodurch OBD-Funktionen und stabile Regelkreise zur Entlastung des Prüfstandsbedienpersonals implementiert werden konnten.

Zentrales Element des geänderten Motoraufbaus ist dabei eine vollständig neu konstruierte Ansauganlage mit integriertem Kraftstoffeinspritzventil in unmittelbarer Nähe des Zylinderkopfflansches für eine präzise äußere Gemischbildung [7]. Stromaufwärts ist ein ausgeprägtes Saugrohrplenum zum Ausgleich von Druckpulsationen für eine Regelung des Ansaugdrucks angeordnet. Darin ist ein elektrisches Heizelement zur

Temperierung der Ansaugluft auf das gewünschte Niveau integriert. Zur Erfassung des Ansaugluftmassenstroms strömt das gefilterte Fluid an einem Heißfilm-Luftmassenmesser vorbei und passiert vor Eintritt in den Luftsammler noch das elektronische Drosselklappenelement. In den Zylinderkopf wurde zur Erfassung des Brennraumdrucks eine zusätzliche Messbohrung integriert, über die ein piezoelektrischer Drucksensor bündig eingebracht werden kann. Die sowohl für die Druckindizierung, als auch die Phasenzuordnung der Motorsteuerung erforderliche Winkelerfassung erfolgt jeweils am vorderen Kurbelwellenende über inkrementelle Geber. Zur eindeutigen Beschreibung der Volumenfunktion am vorliegenden Prüfmotor ist es unerlässlich, neben der Kurbeltriebskinematik auch die jeweils aktive Zylinderkopfposition des VCR-Systems (Variable Compression Ratio) aufzuzeichnen. Die üblicherweise mit Wassereinspritzung zur Kühlung, Schalldruckminimierung und zur Sicherstellung des Explosionsschutzes am Aufstellort ausgestattete Auspuffanlage wurde durch ein trockenes System ersetzt [9]. Es nimmt je eine Sprung- und Breitbandlambdasonde zur Erfassung des Verbrennungsluftverhältnisses auf und mündet über einen Serienschalldämpfer für Zweiräder in die Atmosphäre, wobei die vorgegebenen Anforderungen hinsichtlich Strömungsquerschnitten und Abgasgedruck erfüllt werden [1,9]. Diverse Temperatur- und Druckmessstellen in den Medienkreisläufen und entlang des Luftpfades ergänzen die erweiterte Ausstattung des Prototypenprüfmotors, wie Abbildung 1 zu entnehmen ist.

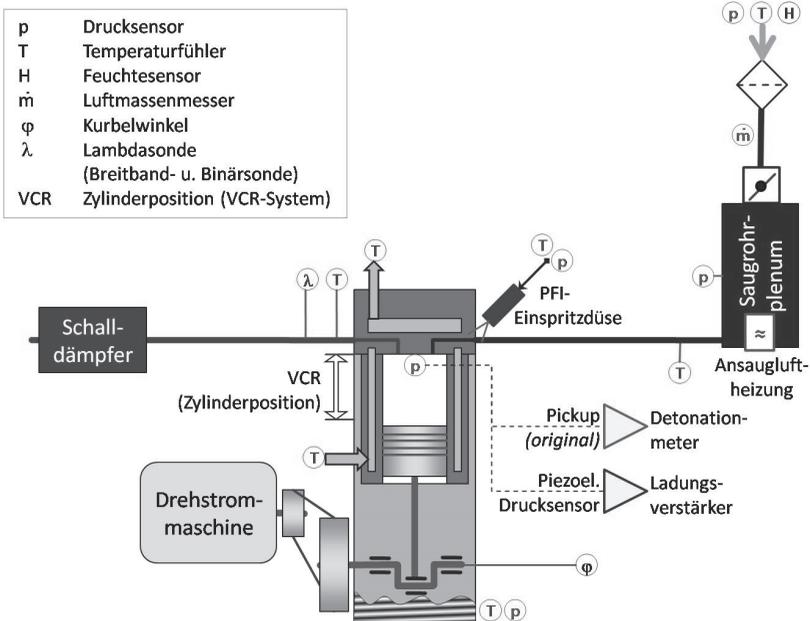


Abbildung 1: Prüfmotor mit Kennzeichnung der Messstellen

2.1 Verfahrensbeschreibung

Die Prüfbedingungen des GKI-Verfahrens sind brennverfahrensseitig gekennzeichnet durch eine stöchiometrische Gemischzusammensetzung und eine wirkungsgradoptimale Verbrennungsschwerpunktlage (φ_{50}), wobei der Zündwinkel als Stellgröße dient und entsprechend des online ermittelten Heizverlaufs der vorausgegangen Arbeitsspiele für das aktuelle ausgegeben wird [7,10]. Die Kraftstoffeinspritzung erfolgt saughubsynchron in den Ansaugkanal des Zylinderkopfes unter bestmöglicher Ausnutzung der Verdampfungsenthalpie [7,11]. Für eine weitestgehende Entkopplung des Betriebspunktes von den Umgebungsbedingungen erfolgt eine Konditionierung der Ansaugluft bezüglich Druck (930 mbar) und Temperatur (50 °C). Einen Überblick über die Prüfbedingungen gibt die nachfolgende Tabelle.

Tabelle 1: Prüfbedingungen bei der GKI-Bestimmung [7]

Kriterium	Einheit	Wert
Saugrohrdruck	mbar	930
Drehzahl	min ⁻¹	600±6
Verdichtungsverhältnis ε	-	variabel, eingeregelt auf $p_{K_{Knock95}} = 1,2$ bar
Gemischbildung	-	Saugrohreinspritzung
Einspritztiming	-	saughubsynchron, Einspritzende 240°KW v. ZOT
Einspritzdruck	bar	3,5
Verbrennungsluftverhältnis	-	1,00 (stöchiometrisch)
Ansauglufttemperatur	°C	50
Zündwinkel	°KW v. ZOT	variabel, Stellgröße für $\varphi_{50} = 7,5 \pm 0,5$ °KW n. ZOT
Kühlsystem	-	Thermosiphon
Kühlwassertemperatur	°C	100±1,7

Als elementares Kennzeichen des GKI-Verfahrens erfolgt die Klopfbewertung auf Basis des gemessenen Zylinderdruckverlaufes, wobei eine statistische Bewertung der auftretenden Klopfdruckamplituden vorgenommen wird [7,12-15]. Als charakteristischer Wert für die Ziel-Klopfintensität sind 1,2 bar Druckamplitude als 5 %-Restquantilwert in der Summenhäufigkeitsverteilungsfunktion ($p_{K_{Knock95}}$) festgelegt.

2.2 Kalibration

Zur Absicherung des Prüfverfahrens bezüglich Wiederhol- und Vergleichbarkeit wurden im Rahmen der Motorversuche zur GKI-Ermittlung an jedem Messtag zusätzlich je drei Kraftstoffe definierter chemischer Zusammensetzung eingesetzt. Diese waren einerseits reines Isooktan (2,2,4-Trimethylpentan, als Bezugspunkt zur Oktanzahlprüfung) sowie Zwei- bzw. Dreikomponentenmischungen mit einem Toluolgehalt in Höhe von 35 %v/v als Vertreter der Aromaten mit einer deutlich verbesserten Übertragbarkeit der Verbrennungseigenschaften in Bezug auf handelsübliche Ottokraftstoffe (v. a. Brenngeschwindigkeit, Klopfverhalten u. Verdampfungsenthalpie). Der höher klopf-feste Referenzkraftstoff wird durch Mischung mit 65 %v/v Isooktan gebildet, wohingegen der zweite neben 52 %v/v Isooktan noch 13 %v/v n-Heptan enthält. Die RON-Werte für diese beiden Referenzpunkte wurden zu 106,9 bzw. 95,1 bestimmt, was eine

sehr gute Vergleichbarkeit mit dem Prädiktionsansatz für das entsprechende Ternärmischsystem nach [16] darstellt. Darüber hinaus sind damit die Klopfestigkeiten heutiger Kraftstoffe weitestgehend abgedeckt.

Nachdem für diese drei Kraftstoffe beim Vergleich der einzelnen Prüfreiheiten zum Teil größere Abweichungen für den ermittelten Wert des Verdichtungsverhältnisses an der definierten Klopfgrenze festzustellen waren, galt es ein Kalibrationsverfahren zu entwickeln, wobei dem weniger klopfesten Aromatenkraftstoff bei einem Verdichtungsverhältnis von etwa 7,7 ein GKI-Wert von 95,0 und der zweiten Referenzsubstanz (geprüft bei ε ca. 10,25) 110,0 GKI zugewiesen wurden.

Zur Kalibration anhand dieser beiden definierten Fixpunkte wurden schließlich drei verschiedene Ansätze zur Inter- / Extrapolation betrachtet. Naheliegender erscheint hierbei die unmittelbare Verwendung des Verdichtungsverhältnisses als Vergleichsgröße, was jedoch zu einem sehr progressiven Anstieg der GKI-Werte oberhalb von 110 und einem entsprechend stark reduzierten Auflösungsbereich unterhalb von 90 geführt hätte. Der zweite Verfahrensansatz bestand in einem Vergleich auf Basis der Zylinderkopfposition, was hinsichtlich der zu betrachtenden Fehlerfortpflanzung anhand einer unmittelbaren Messgröße als positiv zu bewerten ist. Hinsichtlich des Auflösungsbereichs gelten die beim ersten Ansatz genannten Kritikpunkte in umgekehrter Reihenfolge. Als dritte und schließlich favorisierte Basis zur Kalibration wurde ein Vergleich anhand des erreichbaren thermischen Wirkungsgrads η_{th} des Gleichraumprozesses gemäß Gleichung 1 betrachtet [3]. Dieser stellt einen guten Kompromiss hinsichtlich der Auflösungen in beide Richtungen der GKI-Skala dar und bietet anhand des thermodynamisch erreichbaren Wirkungsgradpotentials eine sehr gute, objektive Bewertungsbasis für die Kraftstoffqualität im Ottomotor.

$$\eta_{th} = 1 - \frac{1}{\varepsilon^{\kappa-1}} \quad (1)$$

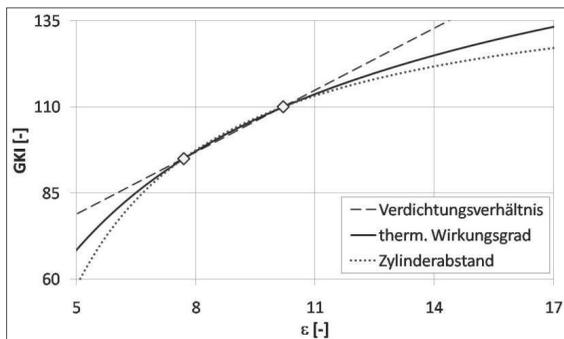


Abbildung 2: Gegenüberstellung der drei Kalibrationsvarianten

Abbildung 2 stellt abschließend die drei Kalibrationsvarianten hinsichtlich ihres Bewertungsmaßstabs ineinander gegenüber. Die beiden stehenden Quadrate markieren hierbei die definitionsgemäßen Fixpunkte der vorgeschlagenen Kalibrationsmethode in Form der beiden Referenzkraftstoffe.

2.3 Resultate

Einen systematischen Vergleich der nach dem GKI-Verfahren bewerteten Kraftstoffe mit deren RON-Werten zeigt Abbildung 3. Im dargestellten RON-Bereich zwischen 84 und 120 wurden gezielt Referenzkraftstoffmischungen aus Isooktan und n-Heptan (PRF, blaue „x“ u. Verbindungslinie) sowie die in der Norm definierten Toluol-Eichkraftstoffe (TSF, rote „+“ u. Verbindungslinie) sowie die in der Norm definierten Toluol-Eichkraftstoffe (TSF, rote „+“ u. Verbindungslinie) [1] hergestellt und deren GKI-Werte bestimmt. Toluol als Reinstoff markiert mit einer Oktanzahl von 120 das obere Ende der betrachteten Klopfestigkeiten (rote Kreismarkierung) [16,17]. Zwei Toluolbasiskraftstoffe mit geringen n-Heptan-Beimischungen schließen die Oktanzahlücke zwischen dem höchsten TSF-Punkt mit RON = 113,0 und dem Toluol [17]. Die beiden Kalibrierkraftstoffe (GKI_ref) sowie Isooktan sind gesondert als rote Quadrate bzw. hellblaue Kreismarkierung hervorgehoben. Es ist festzustellen, dass die PRF-Mischungen im Diagrammausschnitt durch die GKI-Werte tendenziell schlechter bewertet werden als hinsichtlich ihrer RON vergleichbare TSF-Kraftstoffe, was primär auf die unterschiedliche Motorprozessführung sowie die beschriebenen Differenzen hinsichtlich der Bewertungsmethode zwischen beiden Prüfverfahren zurückzuführen ist. Im RON-Bereich zwischen etwa 94 und 101 tangieren die GKI-Werte die 1:1-Korrelationslinie, die ergänzend im Diagramm grau strichpunktiert dargestellt ist. Die als schwarze „+“ eingezeichneten Ringversuchskraftstoffe finden sich größtenteils ebenso in diesem Bereich wieder.

Als stehende, grüne Quadrate sind einwertige Alkohole mit bis zu vier Kohlenstoffatomen in Reinform dargestellt, wobei der ergänzend aufgenommene wasserhaltige Ethanolkraftstoff den Höchstwert markiert. Deren GKI-Werte fallen mit zunehmender Klopfestigkeit (auf RON-Basis) deutlich höher aus als die der Toluolmischkraftstoffe, was möglicherweise durch die im GKI-Verfahren stärker in Erscheinung tretende Verdampfungsenthalpie der Alkohole zu begründen ist. Dem gleichen Trend folgen die in Dreiecksymbolen dargestellten, ethanolhaltigen Modellkraftstoffe [18] sowie die als gelbe Rechtecke markierten Alkoholmischkraftstoffe [7,19].

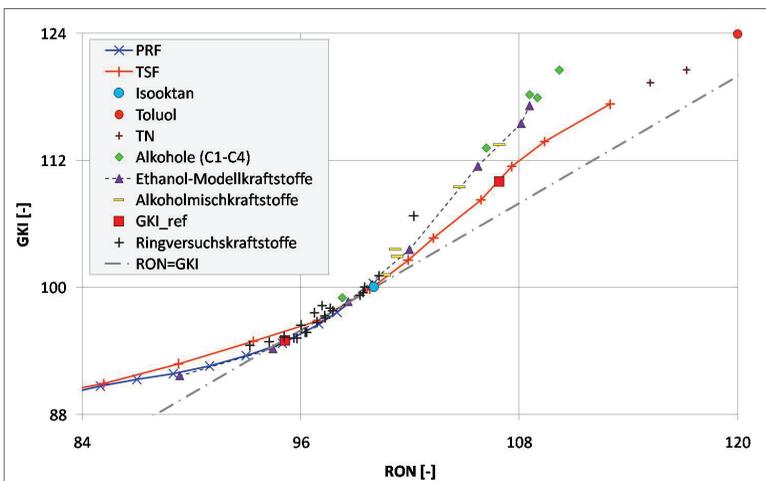


Abbildung 3: GKI-Werte verschiedener Kraftstoffqualitäten im Vergleich zur RON

3 Funktionserweiterung für Research-Oktanzahlbestimmung

Für eine potentielle Markteinführung modifizierter Prüfmotoren zur GKI-Bestimmung erscheint als wesentlicher Kritikpunkt der noch ausstehende Normungsprozess, der eine Akzeptanz als Qualitätsprüfungsmethode unterstützen würde. Aus Kosten- und Bauraumgründen ist aus Sicht eines Laborbetreibers daher zu fordern, dass ein derartiger Prüfmotor vorzugsweise nicht zusätzlich installiert wird, sondern unter Einbeziehung der Funktionsumfänge eines konventionellen RON-Prüfmotors als Integralmaschine verfügbar sein sollte.

Die Darstellung eines bivalenten Prüfbetriebs ist jedoch aufgrund der umfangreich umgesetzten Hardwaremodifikationen bei vollständiger Rückrüstung kaum als nutzerfreundlich zu bezeichnen, weshalb idealerweise die normgemäß geforderte Betriebspunkteinstellung auf Basis von erweiterten Softwarefunktionen dargestellt werden sollte [1]. Ziel dieser Entwicklungsumfänge war es, keine bzw. eine minimale Anzahl an mechanischen Umrüstmaßnahmen beim Wechsel des Betriebsmodus durchführen zu müssen.

3.1 Anpassungen beim Motorbetriebsmodus

Soweit wie möglich sollten daher die brennverfahrensrelevanten Anpassungen über Softwarefunktionen realisiert werden, mithilfe derer die installierten Steuerorgane in geänderter Weise aktuiert werden. Die Fixierung des Zündzeitpunktes auf die geforderten 13 °KW vor OT erscheint hierbei als offensichtlich. Der nahezu ungedrosselte Betrieb (wirksamer Vergaserblendendurchmesser) im Originalverfahren wird bei unveränderter Sauganlage mit ausgeprägtem Saugrohrplenium über eine vollständig geöffnete Drosselklappe abgebildet. Selbstverständlich erfordert das RON-Verfahren ebenso wie das Vorbild mittels Vergaser die Einstellung verschiedener Gemischqualitäten, die im Wesentlichen den Bereich von der Stöchiometrie bis hin zu Lambdawerten um 0,8 abzudecken haben [7,19]. Der Sollwert für die Lambdaregelung ist daher in dieser Betriebsart für Vorgaben durch den Operator freigegeben. Als Gemischbildungsorgan sollte jedoch nach Möglichkeit an der im Saugrohr installierten Magventileinspritzdüse festgehalten werden. Zur Abbildung des Betriebsverhaltens des im Referenzverfahren eingesetzten Vergasers mit seiner anteiligen Kraftstoffvorlageung erschien es zunächst erforderlich, die Phasen der Gemischbildung durch optische Studien im Motorversuch zu erfassen. Der Prüfmotor wurde hierzu wieder auf die ursprüngliche Sauganlage samt Vergaser zurückgerüstet, wobei im Flansch zwischen Vergaser und Zylinderkopf ein zusätzlicher Glasrohrabschnitt mit einer Länge von etwa 35 mm installiert wurde [19]. Es konnte festgestellt werden, dass der dominante Anteil des Kraftstoffs synchron mit der durch den Venturidüsenquerschnitt strömenden Ansaugluft aus dem Steigrohr eingesogen wird. Nach Abschluss des Ansaugvorgangs verbleibt jedoch in nennenswertem Umfang Kraftstoff im Saugrohr zurück, der sowohl als Flüssigkeitsfilm an der Innenwandung des Saugkanals anliegt und teilweise verdampft, als auch von der Vergasersteigdüse abdampft. Da die hierfür notwendige Verdampfungsenthalpie aufgrund der vergleichsweise hohen Wandtemperaturen allerdings nur nachrangig der Ansaugluft entzogen wird, sollte die saughubsynchrone Einspritzung des GKI-Verfahrens hierfür nicht übernommen werden. Für den RON-Sonderbetrieb im Prüfmotor mit Einspritzdüse wurde stattdessen eine Zweifacheinspritzung implementiert. Die sich eröffnenden Variationsparameter für die Mengentei-

lung und der jeweiligen Phasenlage im Arbeitsspiel für die Ansteuerung wurden experimentell auf den Vergaserbetrieb abgestimmt. Die zugehörigen Werte wurden schließlich kraftstoffunabhängig festgelegt und sind Tabelle 2 zu entnehmen.

Als Messkette kann auf die vollständig im Prototypenmotor verbliebene ursprüngliche Sensorik bestehend aus Pickup, Detonationmeter und Knockmeter zurückgegriffen werden. Auf diese Weise kann somit die größtmögliche Übertragbarkeit von Resultaten zwischen dem Sonderbetriebsmodus eines GKI-Motors und einer normgerechten Prüfmotorkonfiguration erzielt werden. Sich ergebende Abweichungen der Oktanzahlwerte, die das Maß der Verfahrenspräzision übersteigen, wären somit in erster Linie der Betriebsführung des Motors mit den oben beschriebenen Modifikationen zuzuschreiben.

Tabelle 2: Prüfbedingungen bei der RON-Bestimmung [nach 1] mit GKI-Hardware

Kriterium	Einheit	Wert
Saugrohldruck	mbar	ungeregelt, 100% DK
Drehzahl	min ⁻¹	600±6
Verdichtungsverhältnis ϵ	-	variabel, angepasst an Standardklopffstärke
Gemischbildung	-	Saugrohreinspritzung
Einspritztiming	-	35% vorgelagert, 65% saughubsynchron, Einspritzende 750 bzw. 260 °KW v. ZOT
Einspritzdruck	bar	3,5
Verbrennungsluftverhältnis	-	variabel (geregelt auf max. Klopfintensität gemäß Knockmeteranzeige)
Ansauglufttemperatur	°C	52 (abhängig von Luftdruck u. Temperaturlüftung)
Zündwinkel	°KW v. ZOT	13 °KW v. ZOT
Kühlsystem	-	Thermosiphon
Kühlwassertemperatur	°C	100±1,7

3.2 RON-Bestimmung mittels Pickup-basierter EDV-Messkette

Für eine Teildigitalisierung des Bewertungsverfahrens stand aus einer früheren Projektphase ein zusätzlich installierter Abgriff zur analogen Erfassung der Signalspannung an der Schnittstelle zwischen Pickup und Detonationmeter zur Verfügung [7,19]. Somit konnte der als sogenannter „critical part“ eingestufte Serienpickup zur Erfassung des Klopfverhaltens im Prüfmotor verbleiben, was in vergleichbarer Weise auch bei der durch den Prüfmotorenhersteller inzwischen vertriebenen, EDV-basierten Variante mit dem *XCP-Panel* genutzt wird [1,4]. Die Funktion des Detonationmeters als Signalanalyse- und -bewertungseinheit wird in beiden Fällen durch die offengelegten Schaltpläne sowie die durchgeführten Analysen softwarebasiert nachgebildet [5,7]. Am Bildschirm der Bedieneinheit des Prototypmotors wird schließlich ein als Zeigerinstrument dargestelltes virtuelles Knockmeter zur Anzeige gebracht, wobei die gewohnten Verstellmöglichkeiten zur Anpassung des Mittelungsintervalls sowie von Skalierung und Verstärkung integriert wurden.

Durch den Bediener kann in einem Untermenü nach Zuordnung zum jeweils eingesetzten Kraftstofftyp eine Datenaufzeichnung ausgelöst werden. Sind alle erforderlichen Kraftstoffproben für eine Oktanzahlbewertung messtechnisch erfasst [1], wird online die resultierende RON berechnet und angezeigt.

3.3 Echtzeitsimulation des Pickupsignals auf Basis des Zylinderdrucks

In einer dritten, konsequent weiterentwickelten Verfahrensvariante sollte schließlich nach Möglichkeit auch die Notwendigkeit zur Verwendung eines Pickups zusätzlich zum eingesetzten Brennraumdrucksensor entfallen können. Es stellte sich zunächst die Frage nach der Art der Modellierung für die Generierung eines Pickup-Ersatzwertes. Im standardisierten Pickup (vgl. Schnittdarstellung in der folgenden Abbildung) wird der Brennraumdruck zunächst auf die Sensormembran eingepreßt, welche sich im Sensorinnenraum über einen Druckteller und einen Hohlstab aus magnetostrikтивem Material abstützt [20]. Die aus den Abstützkräften resultierenden Druckspannungen σ in diesem Stab bewirken bei einer entsprechenden Änderung eine proportionale magnetische Flussdichteänderung B , die schließlich zu einer Induktionsspannung U_{ind} in der im oberen Sensorbereich befindlichen Kupferdrahtspule mit der Windungszahl N führt, Gleichungen 2 u. 3 [19,21].

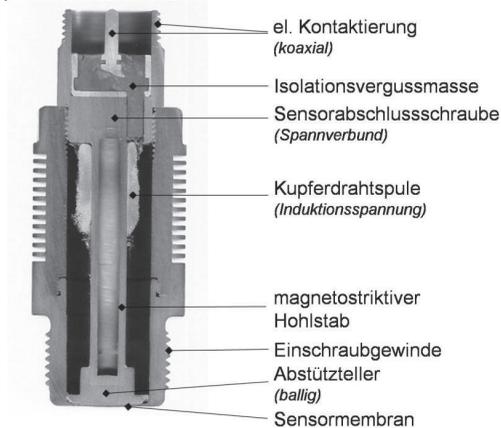


Abbildung 4: Schnittmodell eines Pickups [19]

$$U_{ind} = -N \cdot \dot{\Phi} = -N \cdot A_{Spule} \cdot \dot{B} \quad (2)$$

mit

$$\dot{B} = C_{Magnetostriktion} \cdot \frac{d\sigma}{dt} = C_{Magnetostriktion} \cdot \frac{A_{Sensor,aktiv}}{A_{Hohlstab}} \cdot \frac{dp}{dt} \quad (3)$$

Unwägbarkeiten hinsichtlich des Einflusses der Randzoneneffekte im Übergangsbereich von der Membran zum Sensorgehäuse ($A_{Sensor,aktiv}/A_{Hohlstab}$), Materialeigenschaften ($C_{Magnetostriktion}$), der Verspannungswirkung des Sensorverbunds im unbelasteten Zustand und nicht zuletzt der Dämpfungswirkung des RC-Gliedes als Eingangsfilter am Detonationsmeter gaben den Ausschlag, kein physikalisches, sondern ein mathematisch-analytisches Modell einzusetzen. Dieses beinhaltet die Bestimmung von Typ, Ordnung und schließlich der Koeffizienten eines Differentialgleichungssystems [22].

Bei klopfendem Motorbetrieb wurden für verschiedene Kraftstoffe und Verdichtungsverhältnisse jeweils die Pickup-Rohsignalverläufe und der synchron im Brennraum herrschende Zylinderdruck als Trainingsdatensätze über jeweils 300 Arbeitsspiele aufgezeichnet. Offline wurde im Anschluss die numerische Systemanalyse für das Übertragungsverhalten vom Zylinderdruck hin zur Pickup-Induktionsspannung durchgeführt, wobei lineare Differentialgleichungssysteme bis zur vierten Ordnung betrachtet wurden. Als Auswahlkriterium für Typ und Form der Differentialgleichung wurde das Signalfolgeverhalten für die so ermittelte analytische Pickup-Signalspannung herangezogen, wobei ab der dritten Ordnung keine nennenswerten Verbesserungen erzielt werden konnten. Die Übertragungsfunktion lässt sich somit allgemein in Form von Gleichung 4 darstellen, wobei der Anteil der ersten Ableitung erwartungsgemäß dominierte.

$$G(s) = \frac{A_2 s^2 + A_1 s + A_0}{B_3 s^3 + B_2 s^2 + B_1 s + B_0} \quad (4)$$

Zur Unterbindung von Schwingungsanregungen in der analytischen Lösung des generierten Pickupsignals erwies sich eine zusätzliche moderate Tiefpassfilterung des Zylinderdrucks mit einer Grenzfrequenz von 3,0 kHz zur Unterdrückung der Klopfsignalanteile als vorteilhaft. Der dadurch entstehende zeitliche Versatz der Übertragungsfunktion ist für das Prüfverfahren nicht relevant, da die Klopfintensitätsbewertung analog zur Verarbeitungsweise im Detonationmeter maximalwertorientiert erfolgt und somit die Phasenlage keinen Einfluss auf das erhaltene Resultat ausübt [5,7].

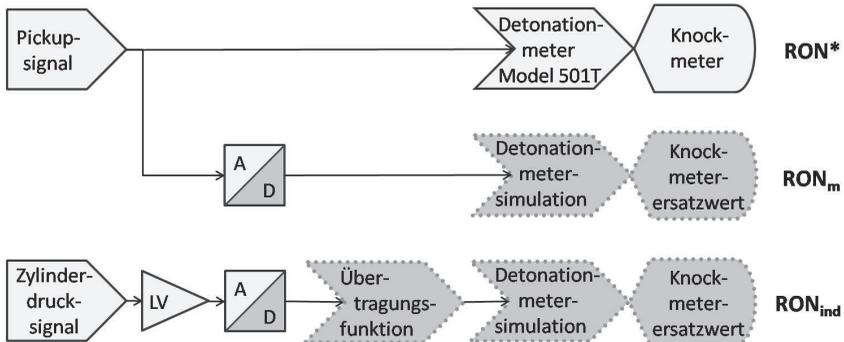


Abbildung 5: Sukzessive digitalisierte RON-Bestimmungsmethoden

Abbildung 5 stellt abschließend die drei sukzessive umgesetzten Bewertungspfade zur Bestimmung von Oktanzahlen am vorliegenden Prototypenmotor schematisch gegenüber. Allen Varianten gemeinsam ist die beschriebene Sonderbetriebsart zur Simulation des ursprünglichen Vergaserverhaltens mit der geänderten Motorhardware. Die *Knockmeterwerte* zur Berechnung der als RON^* bezeichneten Klopfestigkeitskennzahl wurden dabei manuell am entsprechenden Drehspulinstrument des Prüfmotors abgelesen (vgl. Kap. 3.1). Die gesamte Messkette ist vollständig analog aufgebaut und unterscheidet sich nicht von den standardisierten Prüfmotoren. Entsprechend der fortschreitenden Digitalisierung der Signalerfassung erfolgt für die Ermittlung der als

RON_m bezeichneten Klopfestigkeit ein paralleler Abgriff des Pickupsignals zur kurbelwinkelsynchronen Aufzeichnung (Kap. 3.2). Die Weiterverarbeitung zur Bestimmung eines *Knockmeterersatzwertes* erfolgt sodann über einen als *Detonationmetersimulation* bezeichneten Funktionsblock, der in [5,7,13] detailliert analysiert und beschrieben ist. Für die konsequente Umsetzung eines Prüfverfahrens mit nur einem Brennraumdruckaufnehmer zur Vermeidung einer mechanischen Bearbeitung des Zylinderkopfs sowie einer Minimierung des Handlingaufwands für die Sensorik erfolgt schließlich für die RON_{ind} die Datenanalyse auf Basis des kurbelwinkelsynchron aufgezeichneten Zylinderdruckverlaufs. Zusätzlich zu den bei der RON_m eingesetzten Funktionsumfängen ist hierbei noch die oben beschriebene *Übertragungsfunktion* als Schlüsselement zur Generierung eines Pickupsignalverlaufs wie nachfolgend dargestellt erforderlich.

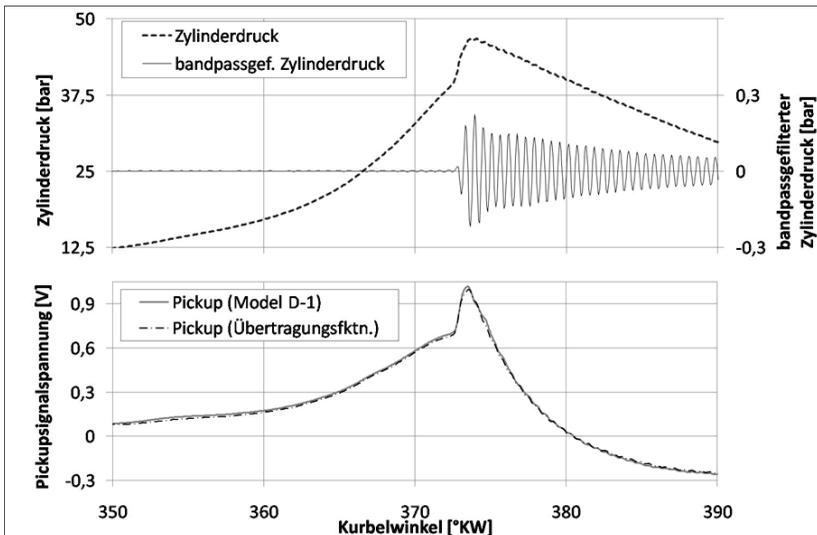


Abbildung 6: Verläufe von Zylinderdruck, Klopfsignal, Pickup und berechnetem Pickupverhalten

3.4 Ergebnisse im Kontext der Ringversuchsstatistik

Zur Qualifizierung der modifizierten Prüfverfahren für die RON-Bestimmung sollte die qualitative Beurteilung nicht nur anhand von Schnittstellengrößen wie zum Beispiel der Vergleich von Pickup-Signalverläufen erfolgen, sondern auch die integrale Funktionsweise überprüft werden. Hierzu wurde mit dem Prototypenmotor an den Ringversuchen des Fachausschusses Mineralölnormung (FAM AA643) aktiv teilgenommen, welcher unter anderem der Überprüfung der in der Norm angegebenen Verfahrenspräzision dient. Monatlich werden hierzu jeweils zwei Ottokraftstoffe als Blindproben an die teilnehmenden Prüflabore verschickt. Die Bestimmung und Meldung der zugehörigen Kennzahlen erfolgt in Eigenverantwortung durch die jeweiligen Laboratorien, wobei die Resultate bis zu einem vorgegebenen Stichtag beim Obmann des Ringversuchs eingegangen sein müssen. Abbildung 7 gibt für die Kraftstoffproben 304-339 anhand der

rechteckigen Felder Aufschluss über das jeweilige Streuband für die ermittelten RON-Werte im Ringversuch, wobei der arithmetische Mittelwert als Querstrich dargestellt ist. Eventuell erkannte Ausreißer wurden für die Darstellung entsprechend der Vorgaben durch die Normung bereits eliminiert. Auffallend hierbei ist die sehr gute Präzision im Qualitätsbereich handelsüblicher Ottokraftstoffe (bis RON = 100) sowie eine deutliche Zunahme der Streubandbreite für Oktanzahlen über 100, welche jedoch durch die Norm noch gedeckt ist [1].

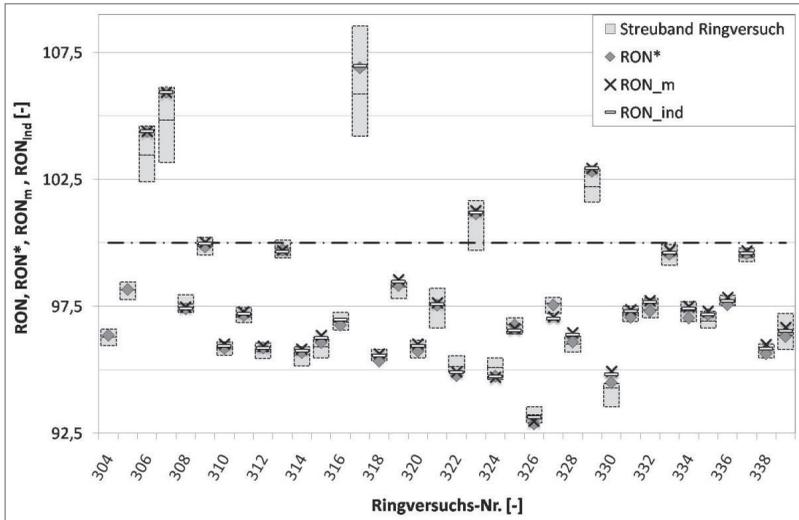


Abbildung 7: Ringversuchsstatistik zur RON-Bestimmung

Es gliedern sich in die Statistik beginnend bei Probe 304 die Resultate der zuerst umgesetzten Verfahrensvariante RON^* als dunkle Quadrate ein. Sie lassen eine gute Abbildung des Mittelwerts der Klopfintensität erkennen, wobei sie fast für alle Kraftstoffe innerhalb des Ergebnistreubands, das durch die normgerecht arbeitenden Ringversuchsteilnehmer definiert wird, zu liegen kommen. Einen Monat später finden sich dann mit Probe 306 beginnend auch die Werte für die beiden digitalisierten Verfahrensvarianten RON_m und RON_{ind} .

Für deren Abweichungen zur konventionell abgelesenen RON^* sind neben den Fehlermöglichkeiten bei der Messkettenapproximation vorrangig Einflüsse durch den Prüfstandsoperator anzuführen, da die zur Bestimmung der RON^* -Kennzahl erforderliche Ablesung der Knockmeterwerte manuell erfolgt. Dies geschieht jeweils durch Beobachtung des Zeigerausschlags über einen nicht explizit vorgegebenen Zeitraum möglichst stationären Klopfbetriebs. Für die elektronischen Datenverarbeitungspfade wurde eine arithmetische Mittelwertbildung der Klopfintensitäten typischerweise über eine Aufzeichnungsspanne von etwa 1000 Arbeitsspielen herangezogen. Thermisch bedingte Änderungen der Verstärkungswirkung im analog aufgebauten Detonationmeter sowie Nichtlinearitäten infolge Sättigungseffekten an den Anzeigerändern des Drehspulinstruments sind außerdem mögliche Einflussquellen für beobachtbare Differenzen [9,19]. In der überwiegenden Anzahl an Kraftstoffproben unterscheiden sich

die am Prototypmotor ermittelten Oktanzahlwerte untereinander um nicht mehr als 0,2 RON. Außerdem finden sich die bestimmten Oktanzahlen mit wenigen Ausnahmen vollständig innerhalb des vorgefundenen Streubands aller Prüflabore.

4 Zusammenfassung

Mit dem GKI-Verfahren steht ein motorisches Prüfverfahren zur Bewertung der Klopfestigkeit von Ottokraftstoffen zur Verfügung, das unter Nutzung zeitgemäßer Mess- und Datenverarbeitungstechnik ein hohes Maß an Objektivität und Bedienkomfort bietet. Nicht zuletzt aufgrund des geänderten Betriebsmodus (stöchiometrisches Mischungsverhältnis, konstante und optimale Verbrennungsschwerpunktlage), der über die integrierte Motorsteuerung eingestellt wird, ist eine sehr gute Übertragbarkeit auf aktuelle Brennverfahren gegeben.

Anhand umfangreicher theoretischer und experimenteller Analysen konnte zur Anhebung der Akzeptanz des GKI-Verfahrens als potentiell neuer Prüfstandard ein zusätzlicher Betriebsmodus entwickelt werden, der die Anforderungen bei der RON-Bestimmung ohne mechanische Motorumrüstmaßnahmen auf Basis von Softwarefunktionen erfüllt. Eine konsequente Digitalisierung wurde schließlich bei der als RON_{ind} bezeichneten Verfahrensvariante umgesetzt, die einen bivalenten Motorbetrieb auch ohne zusätzliche Indizierbohrung erlaubt, indem der piezoelektrische Brennraumdrucksensor über die bestehende Pickupmontagebohrung bei gleichzeitigem Entfall des Pickups adaptiert wird. Das zur RON-Bestimmung erforderliche Sensorsignal wird hierbei aus dem Verlauf des Zylinderdrucks online berechnet und weiterverarbeitet. Das positive Abschneiden bei der Vermessung von Ringversuchsproben lässt aus technischer Sicht eine Eignung als alternatives RON-Prüfverfahren zu.

Literatur

- [1] ASTM D2699-13b: Standard Test Method for Research Octane Number of Spark-Ignition Engine Fuel. 2013.
- [2] ASTM D2700-14: Standard Test Method for Motor Octane Number of Spark-Ignition Engine Fuel. 2014.
- [3] Heywood, J. B.: Internal Combustion Engine Fundamentals. McGraw-Hill, Inc., New York, 1988.
- [4] Waukesha Gas Engines: CFR F1/F2 XCP Digital Octane Panel, and Octane Analyzer operation, maintenance parts catalog. Form 947-2, 2nd edition, 2011.
- [5] Waukesha CFR: Detonation Meter Model 501-C (M-Series) and Associated Equipment Operation & Maintenance. Form 848, 1st edition, Wisconsin, 1998.
- [6] Spausta, F.: Treibstoffe für Verbrennungsmotoren. Zweiter Band, Eigenschaften und Untersuchung der flüssigen Treibstoffe, Die gasförmigen Treibstoffe. 2. Auflage, Springer, 1953.
- [7] Huber, K.; Hauber, J.; Raba, A.; Nell, R.: Neues Kraftstoffprüfverfahren zur Bestimmung der Klopfestigkeit. MTZ – Motortechnische Zeitschrift, Jg. 74 (7/8), S. 610-617, 2013.

- [8] Hauber, J.; Huber, K.; Nell, R.: Das neue GKI-Verfahren zur motorischen Bewertung der Klopfestigkeit von Ottokraftstoffen. Erdöl Erdgas Kohle, Jg. 131 (5), S. 201-206, 2015.
- [9] Waukesha CFR: F-1 & F-2 – Research Method (F1), Motor Method (F2), Octane Rating Units, Operation & Maintenance. Form 847, 2nd edition, Wisconsin, 2003.
- [10] Bargende, M.: Schwerpunkt-Kriterium und automatische Klingelerkennung – Bausteine zur automatischen Kennfeldoptimierung bei Ottomotoren. MTZ – Motortechnische Zeitschrift, Jg. 56 (10), S. 632 ff., 1995.
- [11] BOSCH (Hrsg.): Gasoline port fuel injection – The cost-effective powertrain system is now even more energy-efficient. Online verfügbar unter: <http://www.bosch-mobility-solutions.com/en/products-and-services/passenger-cars-and-light-commercial-vehicles/powertrain-systems/gasoline-port-fuel-injection/>. (zuletzt abgerufen am 04.04.2018).
- [12] Fischer, M. et al.: Klopferkennung im Ottomotor – Neue Tools und Methoden in der Serienentwicklung. MTZ – Motortechnische Zeitschrift, Jg. 64 (3), S. 186 ff., 2003.
- [13] Huber, K.; Hauber, J.; Nell, R.: Cylinder Pressure based Knock Detection – Challenges in Cylinder Pressure Indication and Application in a new engine-based Fuel Test Method. In: Kratzsch, M.; Günther, M.: Knocking in Gasoline Engines. Tagungsband '4. Internationale Tagung Ottomotorisches Klopfen (IAV)', Berlin, 2013.
- [14] Huber, K.; Hauber, J.: Verfahren zur Charakterisierung der Klopfestigkeit von Kraftstoffen – Method for Characterising the Knock Resistance of Fuels. Patent: EP 2 269 058 B1, 2013.
- [15] Huber, K.; Hauber, J.: Method for Characterising the Knock Resistance of Fuels. Patent: US 8,468,873 B2, 2013.
- [16] Morgan, N; et al.: Mapping surrogate gasoline compositions into RON/MON space. Combustion and Flame, Vol. 157, 2010.
- [17] Kalghatgi, G.; et al.: An Alternative Method Based on Toluene/n-Heptane Surrogate Fuels for Rating the Anti-Knock Quality of Practical Gasolines. SAE 2014-01-2609, SAE Int. J. Fuels Lubr. 7(3), S. 663-672, 2014.
- [18] Da Silva jr., A.: The Octane Numbers of Ethanol-Containing Multi-Component Gasoline Surrogates. Diploma Thesis, UFSC Joinville / BR, 2016.
- [19] Hauber, J.; Huber, K.: Motorische Kraftstoffkennzahlen. Abschlussbericht zum Forschungsprojekt (nicht öffentlich), Ingolstadt, 2012.
- [20] Eldredge, K. R. (Standard Oil Company): Detonation Indicator, Type D-1, US Patent 2,269,760, 1942.
- [21] Kuchling, H.: Taschenbuch der Physik. Fachbuchverlag Leipzig im Carl Hanser Verlag, 17. Auflage, 2001.
- [22] Huber, K.; Hauber, J.: Verfahren zur Bestimmung einer die Klopfestigkeit charakterisierenden Kenngröße eines Kraftstoffs sowie entsprechende Prüfanordnung. EP 3 091 356 A1, publication no. 16168099.6, 2016.

Phänomenologische Untersuchung des Einspritzverhaltens von Pflanzenölkraftstoff

Robert Altmann, H.-P. Rabl, M. Gaderer

Kurzfassung

Die Nutzung alternativer, regenerativer Energieträger in der Antriebstechnik birgt ein hohes Potential zur Reduzierung von Treibhausgasemissionen. Darüber hinaus werden in schweren Maschinen des Land- und Forstwirtschaftssektors Kraftstoffe benötigt, die eine hohe Energiedichte, ähnlich den bisherigen konventionellen Kraftstoffen, aufweisen. Die Verwendung von Pflanzenölkraftstoff weist noch weitere Vorteile hinsichtlich Produktion, Transportwegen oder auch Nutzung von Nebenprodukten auf. Jedoch sind bei einer direkten Verwendung von Pflanzenölen als Treibstoff die geänderten physikalischen und chemischen Eigenschaften zu berücksichtigen. In diesem öffentlich geförderten Projekt sollen einerseits die Auswirkungen von Pflanzenölkraftstoffen auf den Einspritz-, Gemischbildungs- und Verbrennungsprozess untersucht und andererseits soll ein Brennverfahren für Motorsysteme der Abgasstufe IV und V entwickelt werden.

An einem Einspritzsystemprüfstand werden die Auswirkungen des Pflanzenölkraftstoffes auf das Einspritzsystem, insbesondere den Injektor, dargestellt. Zum einen wird mit dem Einspritzanalysator Moehwald HDA der Einfluss auf das hydraulische Verhalten ermittelt und zum anderen kann durch eine optisch zugängliche Hochdruck-Hochtemperatur-Kammer das Strahlaufbruchverhalten visualisiert werden. Als optische Messmethode wird dabei das Schlierenverfahren angewendet, um erste lokale Verdampfungsphänomene identifizieren und damit eine qualitative Interpretation der Kraftstoffzerstäubung vornehmen zu können. In ersten Versuchsreihen werden zunächst Messungen mit Dieselmotorkraftstoff nach DIN EN 590 durchgeführt, welche als ausgehende Referenz betrachtet werden. Im Anschluss erfolgt eine Wiederholung und Gegenüberstellung der Messungen mit Pflanzenölkraftstoff nach DIN 51623. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse sollen eine fundierte Analyse des Einspritzprozesses und eine Adaption der Kennfeldbedeutung eines Versuchsmotors ermöglichen.

Entwicklung eines Multisensors für hydraulische Prozessanlagen

Sascha Braun, J. Krahl

Kurzfassung

Mit dem Wissen, welchen Einfluss Kontaminationen auf das Hydrauliköl haben können, wurde die Technik zur Kontrolle dieser Einflüsse stetig weiterentwickelt. Neben passiven Systemen, wie zum Beispiel Hydrauliköl- oder Luftfiltern, wurden auch aktive Systeme, wie die Partikeldetektion, verbessert, damit alle Attribute von Hydrauliköl möglichst lange erhalten bleiben. In dem momentanen Zeitgeist des predictive maintenance (vorausschauenden Instandhaltens) reichen diese Systeme jedoch nicht aus. Das Hydrauliköl muss ganzheitlich erfasst werden. Die bisher entwickelten Sensoren am Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg (TAC) sind in der Lage, die Schmierstoffe zu charakterisieren und Alterung sowie Wasseranteil zu erfassen. Sie wurden dahingehend weiterentwickelt, dass sie auf ein durchflussbasiertes System umgesetzt wurden. Damit kommt es zu keinen ungewollten Störeinflüssen auf bestehende Prozessanlagen.

Ziel dieses Projekts ist es, alle notwendigen Hydraulikölparameter (z.B. Wassergehalt, Partikelanzahl und -größe, Oxidationsstabilität und Alterung) in einem System zu erfassen. Somit soll ein Multisensorsystem geschaffen werden, mit dem die vielen Einzellösungen komprimiert werden.

Weiterhin soll das in der Wirtschaft etablierte System der laserbasierten Partikeldetektion durch einen induktiven Partikelsensor ersetzt werden. Dieser gibt neben der Größe eines Partikels auch dessen grundlegende Zusammensetzung an. Dadurch kann die Partikelquelle und die Fehlerursache schneller eingeschätzt und behoben werden. Zusätzlich sollen zur besseren Fehleranalyse für Betreiber sowie Schmiermittelhersteller die Auswertungen der Messdaten über ein Ampelsystem hinausgehen und detailliertere Informationen zum Fehler geliefert werden.

Optimization of new fuel characterization in a jet stirred reactor

Ghazaleh Esmaeelzade, K. Moshhammer, R. Fernandes, D. Markus, U. Maas, H. Großhans

Abstract

When introducing a new fuel, to achieve low emissions while keeping efficient engine performance, it is necessary to know its chemical characteristics, including its chemical kinetics. Lab-scale model experiments, like flames or jet stirred reactors (JSR) etc. coupled with different diagnostic tools are useful for experimental studies of the combustion properties of such fuels. To extract valuable information from these experiments, they must be designed properly. However, experiments alone do not provide all the necessary information, but a combination with computational fluid dynamics simulations can overcome this limitation and can make things visible that are experimentally not accessible. JSRs allow a detailed investigation of the chemical kinetics. Turbulent jets generated from nozzles are used to obtain a homogeneous and perfectly mixed composition inside. In this study, a spherical JSR has been simulated in order to assess the effects of the underlying physical processes and the geometric parameters on the rapid mixing and spatial homogeneity of flow (which is required to separate kinetic processes from mixing and molecular transport). The large-scale turbulent structures in the flow field are directly resolved on the grid by large eddy simulations whereas the residual stresses are accounted for by a subgrid turbulence model. In a parametric study of the geometry on the JSR, a spherical chamber is considered with a diameter of 3 to 100 mm and four inclined nozzles of an orifice diameter of 0.5 to 1.5 mm which are situated in the equatorial plane and hence create a continuously circulating flow (see Fig. 1). The aim of this work is to propose design guidelines in order to improve the quality of the mixture homogeneity inside the JSR and, consequently, to contribute to an improved understanding of the chemical kinetics of the alternative fuel mixtures, including biofuels.

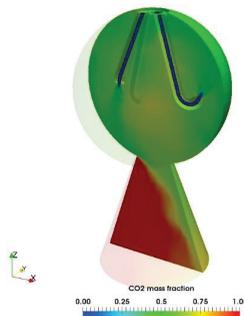


Figure 1: Simulated CO_2 mass fraction decay in the cross section of the reactor

ElectroFuels – Möglichkeiten von CO₂-neutralen Antrieben

Andreas Goldmann, H. Hansen, F. Dinkelacker

Kurzfassung

ElectoFuels könnten eine Lösung auf die Forderung einer Emissionsreduzierung für den steigenden Luft- und Straßenverkehr darstellen. Unter ElectroFuels werden alternative Brennstoffe verstanden, die aus erneuerbaren Ressourcen (Biomasse und Wasser) und erneuerbaren Energien (Wind- und Solarenergie) beispielsweise in einem angepassten elektrochemischen Syntheseverfahren hergestellt werden. Folglich sind ElectroFuels CO₂-neutral oder -frei. Flüssige Brennstoffe werden insbesondere für die zukünftige Luftfahrt aufgrund der hohen Energiedichte unersetzlich sein. Der Einsatz von speziell entwickelten ElectroFuels könnte es zudem möglicherweise erlauben, den Schadstoffausstoß von Flugtriebwerken und Verbrennungsmotoren deutlich zu senken. In Studien am Institut für Technische Verbrennung der Leibniz Universität Hannover wurden numerische Simulationen [1,2] mit detaillierter Reaktionskinetik zur Berechnung der Verbrennungseigenschaften wie Selbstzündungszeit, laminare Brenngeschwindigkeit, adiabatische Flammentemperatur und Verlöscht-Streckungsrate von Jet A-1, n-Oktan, Methan, Methanol, Wasserstoff und Ammoniak durchgeführt. Erste Ergebnisse zeigen, dass n-Oktan, welches voll elektrochemisch synthetisierbar ist, ähnliche Verbrennungseigenschaften wie Jet A-1 aufweist und somit über ein gutes Potenzial als Drop-In-Fuel verfügt. Ein anderer Ansatz zeigt, dass mit einem Gemisch aus Ammoniak/Wasserstoff bei einem Wasserstoffanteil von 44 bis 50 mol% eine ähnliche laminare Brenngeschwindigkeit wie bei Methan erzielt werden kann. Demzufolge könnte Methan durch ein Ammoniak/Wasserstoff-Gemisch in bestehenden Verbrennungssystemen mit geringen Modifikationen ersetzt werden.

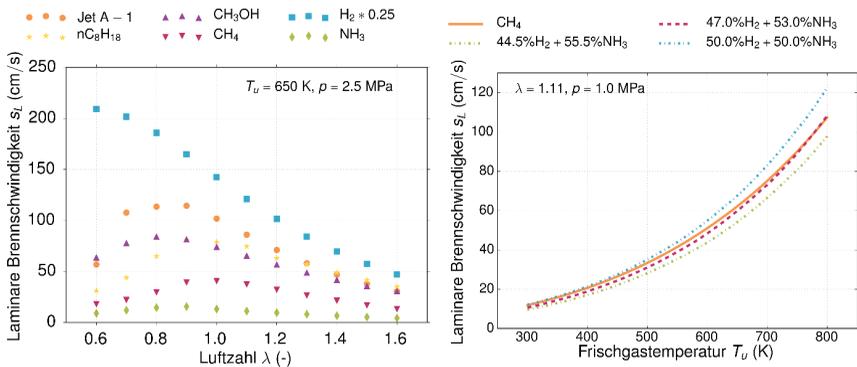


Abbildung: Berechnete laminare Brenngeschwindigkeiten mit detaillierter Reaktionskinetik; links: Verschiedene Brennstoffe, rechts: Ammoniak/Wasserstoff-Gemische



[1] Goldmann, A.; Sauter, W.; Oettinger, M.; Kluge, T.; Schröder, U.; Seume, J.R.; Friedrichs, J.; Dinkelacker, F; A Study on Electrofuels in Aviation, *Energies*, 2018, 11, 392, pp 1-23

[2] Goldmann, A.; Dinkelacker, F; Approximation of Laminar Flame Characteristics on Premixed Ammonia/Hydrogen/Nitrogen/Air Mixtures at Elevated Temperatures and Pressures, *Fuel*, 2018, 224, 366-378

Aspekte und Beurteilung der sicheren verbrennungsmotorischen Anwendung von Oxymethylenethern (OME)

Philipp Haltenort, K. Hackbarth, U. Arnold, J. Sauer

Kurzfassung

Oxymethylenether (OME) sind sauerstoffreiche organische Verbindungen mit variierender Kettenlänge (Abbildung 1). Durch ihre physikochemischen Eigenschaften zeigen OME eine gute Eignung als Kraftstoffkomponenten für selbstzündende Motoren und ermöglichen die simultane Reduktion von Ruß- und NO_x-Emissionen [1]. Eine Herstellung von OME aus erneuerbaren Ressourcen entspricht dem Grundgedanken einer nachhaltigen verbrennungsmotorischen Mobilität [2].



Abbildung 1: Strukturformel von OME_n.

Die Synthese [3] und Charakterisierung [4,5] von hochreinen OME erfolgte in Vorarbeiten. Die Ergebnisse werden für eine Beurteilung hinsichtlich der Einstufung und Kennzeichnung nach Verordnung (EG) Nr. 1272/2008 „Classification, Labelling and Packaging of substances and mixtures“ (CLP) genutzt. Die präsentierte Arbeit diskutiert die Einstufung der einzelnen OME-Verbindungen und die damit verbundenen Potentiale eines OME-Kraftstoffs. Da bisher keine Indizien für toxikologische oder CMR-relevante Gefahrenpotentiale für OME bekannt sind [6,7], wird der Schwerpunkt der Betrachtung auf physikalische Gefahren gelegt.

In Abbildung 2 werden die Flamm- und Siedetemperaturen von reinen OME-Oligomeren und OME₃₋₅-Mischungen aufgetragen. Das Diagramm kennzeichnet die Definitionsbereiche der Gefahrenkategorien für entzündbare Flüssigkeiten nach CLP. OME₁ und OME₂ können der Kategorie 2 zugeordnet werden. OME₃ wird als Gefahrstoff der Kategorie 3 identifiziert. OME₄ und OME₅ müssen nicht als Gefahrstoffe deklariert werden. Eine untersuchte Mischung von OME₃₋₅, welche eine Destillatfraktion der Gleichgewichtssynthese darstellt (OME_{3-5, syn.}), hat einen Flammpunkt von 62 °C [8]. Für eine alternative OME₃₋₅-Mischung mit dem Gewichtsverhältnis 1:1:1 für OME₃, OME₄ und OME₅ (OME_{3-5, Mix}) wurde ein Flammpunkt von 70 °C ermittelt [8]. Der Siedebeginn beider Mischungen wird mit Hilfe des Siedepunkts von OME₃ abgeschätzt. Für beide OME₃₋₅-Mischungen wäre keine Klassifizierung notwendig, da sie keinen Gefahrstoff nach CLP darstellen. Ein verbrennungsmotorischer Kraftstoff ohne Gefahrenkennzeichnung stellt aus sicherheitstechnischer Perspektive einen bedeutenden Vorteil dar. Weitere sicherheitsrelevante Aspekte und Potentiale eines OME-Kraftstoffs werden im Rahmen der vorgestellten Arbeit präsentiert.

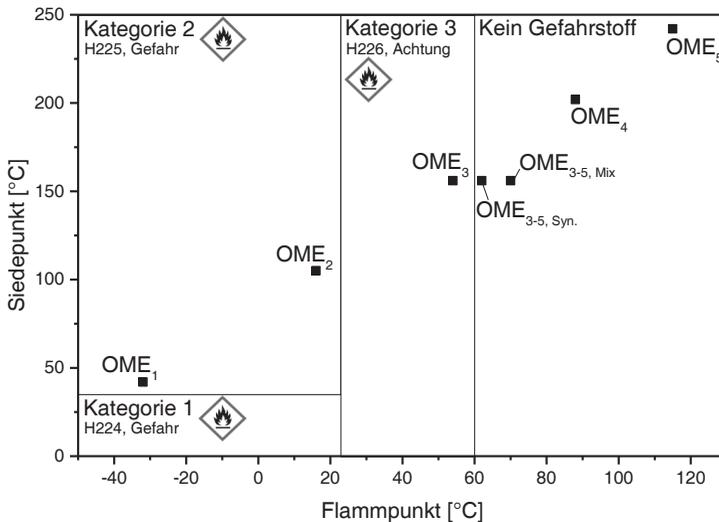


Abbildung 2: Auftragung von Flamm- und Siedetemperaturen von OME (-Mischungen) mit Spezifikation der Gefahrenkategorien für entzündbare Flüssigkeiten nach CLP.

Literatur

- [1] M. Härtl, K. Gaukel, D. Pélerin, G. Wachtmeister, *MTZ Motortech. Z.* **2017**, 78 (2), 52 – 59.
- [2] N. Mahbub, A. O. Oyedun, A. Kumar, D. Oestreich, U. Arnold, J. Sauer, *J. Clean. Prod.* **2017**, 165, 1249 – 1262.
- [3] L. Lautenschütz, D. Oestreich, P. Haltenort, U. Arnold, E. Dinjus, J. Sauer, *Fuel Process. Technol.* **2017**, 165, 27 – 33.
- [4] D. Deutsch, D. Oestreich, L. Lautenschütz, P. Haltenort, U. Arnold, J. Sauer, *Chem. Ing. Tech.* **2017**, 89 (4), 486 – 489.
- [5] L. Lautenschütz, D. Oestreich, P. Seidenspinner, U. Arnold, E. Dinjus, J. Sauer, *Fuel* **2016**, 173, 129 – 137.
- [6] Infocard: 2,4,6-Trioxaheptane, *ECHA*, <https://echa.europa.eu/de/substance-information/-/substanceinfo/100.252.660> (geprüft: 29.05.18).
- [7] Infocard: 2,4,6,8-Tetraoxanonane, *ECHA*, <https://echa.europa.eu/de/substance-information/-/substanceinfo/100.252.595> (geprüft: 29.05.18).
- [8] P. Haltenort, L. Lautenschütz, D. Oestreich, K. Hackbarth, U. Arnold, J. Sauer, *Book of Abstracts – 5th International Conference: Tailor-Made Fuels from Biomass (TMFB)*, 20. bis 22. Juni, Aachen, Deutschland, **2017**, 69 – 71.



Characteristics in the ignition of fuel/air compositions

Johann-Robert Kummer, S. Essmann, H. Großhans, D. Markus, U. Maas

Abstract

Combustion engines are a well-developed technique. However, limited conventional fuels and the urgent reduction of greenhouse gas emissions make it necessary to use alternative fuels in the future. The combustion properties of possible alternatives need to be determined as well as the underlying processes and mechanisms. Moreover, validated modeling approaches are required to understand differences in the combustion of conventional and alternative fuels. Ignition, as the first step of a combustion process, plays an important role, because it largely affects the subsequent combustion process and the pollutant formation. By studying often-examined fuels, profound knowledge of distinct influence quantities is obtained. Therefore, we first assess the ignition of hydrogen/air, ethene/air and propane/air at low energy levels with a combined numerical-experimental approach. As regards the simulations, the program INSFLA which includes detailed kinetic and transport models, was employed. In the experiments, the combustible/air mixtures were ignited by means of a capacitance spark. The low-energetic discharges between the electrodes were triggered at a precise instant of time by a Nd:YAG laser with an output wave-length of 266 nm. Laser light from a second laser setup tuned to 283.6 nm was used to excite OH radicals. Single-shot images of the induced fluorescence were recorded and post-processed to characterize relative radial OH concentration profiles. Experimental and numerical results are in good agreement. Significant differences were observed with respect to the initial flame kernel growth after ignition of the fuel/air mixtures due to different ignition delay times. Shorter time spans between discharge and ignition reduce volatility and the impact of perturbations. This outcome stresses the importance of loss processes and influence of fluid dynamics on the early phase of ignition and motivates their future implementation in a modeling approach.

Entwicklung eines Klima- und Höhensimulationsprüfstands zur Untersuchung und Bewertung von neuartigen Biokraftstoffen für den Einsatz in luftgekühlten Kleinmotoren

Artur Martel

Kurzfassung

Derzeit auf dem Markt verfügbare Kraftstoffe für den Einsatz in handgeführten motorbetriebenen Geräten für Forstwirtschaft, Landschaftspflege und Bauwirtschaft basieren ausschließlich auf fossilen Rohstoffen. Ziel dieses Forschungsprojektes ist die Entwicklung eines Bio-Gerätebenzins, das bis zu 100 % auf Basis nachwachsender Rohstoffe besteht und dadurch eine deutliche Senkung der klimaschädlichen CO₂-Emissionen ermöglicht. Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens in Kooperation mit Hochschulen und Partnern aus der Industrie befasst sich das Institut für Energieeffiziente Mobilität (IEEM) der Hochschule Karlsruhe mit der Untersuchung und Bewertung von neuartigen Biokraftstoffen für kleine motorbetriebene Arbeitsgeräte (z.B. Kettensägen, Heckenschneider oder Blasgeräte) hinsichtlich ihrer ökologischen, ökonomischen und motorischen Eignung (z.B. Kaltstart). Um weltweit anwenderrelevante Umgebungsbedingungen (verschiedene Klimazonen und geodätische Höhen) zu simulieren, wurde zur Durchführung motorischer Untersuchungen eigens ein Geräteprüfstand mit Klima- und Höhensimulationskammer entwickelt, in der Temperatur, Druck und Luftfeuchte konditioniert werden können (siehe Bild 1).

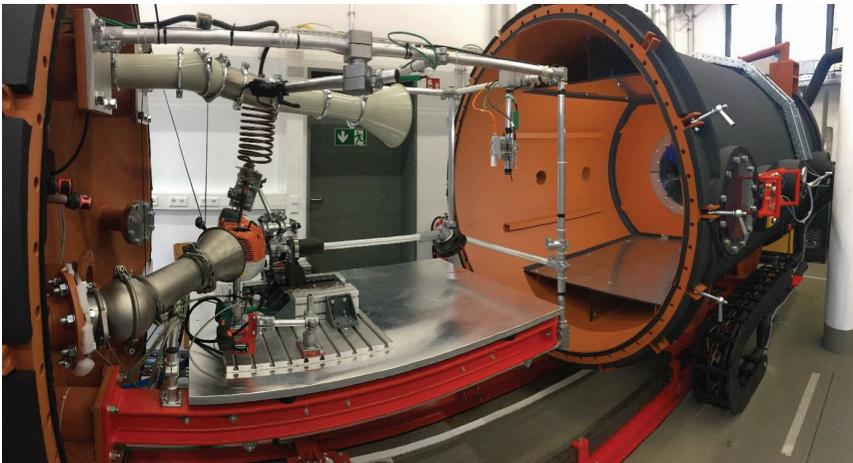


Bild 1: Geöffnete Prüfstandskammer mit eingespanntem Prüfträger

Die 6 m³ große Prüfzelle basiert auf dem Konzept der Gesamtkammeranlage und ist derart dimensioniert, dass der gesamte Prüfling aufgenommen werden kann. Je nach Notwendigkeit kann Messtechnik entweder direkt in der Kammer oder außerhalb platziert werden, wobei sämtliche Leitungen über abgedichtete Kabelführungen nach außen geleitet werden können. Die luftgekühlten Motoren sind vollständig den Umgebungseinflüssen im Inneren der Prüfzelle ausgesetzt, können die konditionierte Verbrennungsluft frei ansaugen und sowohl das Abgas als auch ihre Abwärme wieder direkt an die Kammerumgebung abgeben. Die Kombination aus zweistufiger Kälteanlage mit Ansauglufttrocknung und Heizregister ermöglicht das Einstellen realitätsnaher Bedingungen in der Prüfkammer. Das Arbeitsgerät kann dadurch Bedingungen arktischer Kälte bis hin zu tropischer Hitze (-28 bis 45 °C) ausgesetzt werden. Auch die Simulation verschiedener Höhenlagen (von 0 m bis 3.500 m ü.NN) ist möglich. Zur Aufrechterhaltung des Unterdrucks bei laufendem Motor wird der Druck in der Prüfzelle messtechnisch erfasst und im Zusammenspiel aus Zuluftdrosselklappe und einem der Prüfzelle nachgeschalteten frequenzgeregelten Drehkolbengebläse auf einen vorgegebenen Wert geregelt. Zur Ansteuerung der Arbeitsgeräte bei geschlossenem Behälter wurde eigens ein adaptives Fernsteuerungssystem entwickelt, das es ermöglicht, die Prüflinge per Seilzug zu starten, Choke-Einstellungen vorzunehmen und den Gashebel automatisiert zu betätigen.

Wie in Bild 2 dargestellt, kann die gesamte Anlage in drei Module unterteilt werden:

1. Konditioniereinheit: Kühlen, Erwärmen und Entfeuchten der Verbrennungsluft des Prüflings
2. Prüfkammer: Aufnahme des Prüflings; Klimatisierung der Umgebungsluft
3. Höhensimulation: Kühlung des Abgases; Einstellung des Druckniveaus



Bild 2: Prüfstandsanlage in den Laborräumen am IEEM als CAD-Modell

Grundöلالterung unter Einfluss verschiedener Biokraftstoffe

Anja Singer, J. Krahl

Kurzfassung

Der Einsatz von erneuerbaren Energien im Verkehrssektor sowie die Reduktion der Abhängigkeit von fossilen Energieträgern gehören zu den politischen und wirtschaftlichen Zielen der Europäischen Union und auch in vielen anderen Teilen der Welt. Die Dieselmotornorm (DIN EN 590) erlaubt in Deutschland eine Biodieselbeimischung von bis zu 7 % zum fossilen Dieselmotorkraftstoff. Hydriertes Pflanzenöl (HVO) stellt einen Weg dar, den Biogenitätsgehalt von Dieselmotorkraftstoffen noch zu erhöhen. Versuchs-kraftstoffe wie „*Diesel regenerativ*“ oder „*Diesel R33*“ konnten in Flottenversuchen erfolgreich den Einsatz von Kraftstoffen mit hohem Biogenitätsanteil zeigen. Im Projekt „*Diesel regenerativ*“ wurde ein Testkraftstoff mit 7 % Biodiesel und 93 % HVO in einem Kleinflottenversuch positiv untersucht. Da dieser Kraftstoff die Norm DIN EN 590 nicht vollständig erfüllen konnte, wurde im Projekt „*Diesel R33*“ ein normgerechter Kraftstoff aus 67 % mineralischem Dieselmotorkraftstoff, 26 % HVO und 7 % Biodiesel eingesetzt. „*Diesel R33*“ zeigte nach zwei Jahren Einsatz in einem Großflottenversuch durchweg positive Ergebnisse.

Der im Dieselmotorkraftstoff enthaltene Biodiesel kann im Motoröl langfristig jedoch zu Ölschlamm führen. Er wird beim Regenerationszyklus des Dieselpartikelfilters durch den unverbrannten Kraftstoff über die Kolbenwand in das Motoröl eingetragen. Die hohe Siedelage von ca. 360 °C verhindert seinen destillativen Austrag und reichert ihn somit im Motoröl an. Dieser hat zusammen mit den hohen Temperaturen des Motors und Luftsauerstoff großen Einfluss auf das Motoröl. Der zugrunde liegende Effekt ist eine Autoxidationsreaktion, die gemeinhin als Ölalterung bekannt ist.

Die vorgestellte Arbeit beschreibt Untersuchungen zur Ölalterung im Labormaßstab mit reinem Grundöl und unterschiedlichen biogenen Kraftstoffen. Es wurde unadditiviertes Grundöl verwendet, um den Einfluss der Additive aus den Betrachtungen auszuschließen. Im Einzelnen wurden Grundölgemische mit 20 % biogenem Kraftstoff untersucht, um den Extremfall des Kraftstoffeintrags auf die Ölschlamm-bildung zu simulieren. Dabei wurde der Einfluss von Rapsölmethylester (RME), HVO sowie der beiden Kraftstoffe „*Diesel regenerativ*“ und „*Diesel R33*“ auf Oligomer- und Ölschlamm-bildung in reinem Grundöl untersucht. Im Ergebnis ist festzustellen, dass die Alterung des reinen Grundöls durch die Zugabe von 20 % RME negativ beeinflusst wird.



Multisensor zur zerstörungsfreien Analyse von Kraftstoffparametern

Jens Staufenbiel, O. Schröder, J. Krahl

Kurzfassung

Im Kraftstoffmarkt existiert eine Vielzahl von Kraftstoffen unterschiedlicher Hersteller und Qualitäten. Hinzu kommt der steigende Marktanteil biogener und regenerativer Kraftstoffe, die die Varianz deutlich erweitern werden. Bei näherer Betrachtung kann hier Diesel R33 angeführt werden, dessen biogener Anteil aus unterschiedlichsten Quellen bezogen werden kann, wie zum Beispiel pflanzlichem Öl, Altspeisefett oder auch Algen. Während auf dem deutschen Markt noch von einer weitestgehend einheitlichen Qualität ausgegangen werden kann, schwankt die Qualität europa- und weltweit erheblich. In Hinblick auf die immer strenger werdenden Abgasnormen, die mittlerweile in allen Industrienationen gelten, sind Verbesserungen im motortechnischen Bereich Grenzen gesetzt. Der Slogan „Industrie 4.0“ zeigt uns auf, dass Betriebsstoffe ebenso überwacht werden können, um Motoren im optimalen Arbeitspunkt zu halten und somit Limitierungen durch Abgasnormen zu erreichen. Im Labor lässt sich zwar eine vollständige Aufklärung der Kraftstoffe und deren Eigenschaften durchführen, allerdings ist diese nur mit hohen Kosten für analytische Geräten und Fachpersonal zu bewältigen. Dieses würde auch immer nur eine Momentaufnahme widerspiegeln und kann keinen Alterungsprozess bei Lagerung des Kraftstoffes in Tanks aufdecken. Darüber hinaus wäre dies undenkbar im Hinblick auf die Anwendung als Schnellprüfgerät für Tankstellen, Werkstätten oder gar im Automobil selbst.

Die neu entwickelten und patentierten Kraftstoffsensoren des TAC sind der erste Schritt, unter Anwendung von vergleichsweise einfachen physikalischen Grundprinzipien die Aufklärung von Kraftstoffen sowie Schmierstoffen und deren Qualität ohne Laboraufwand zu bewerkstelligen.



Autorenverzeichnis

Robert Altmann, M.Sc., Labor für Verbrennungsmotoren und Abgasnachbehandlung, Ostbayerische Technische Hochschule Regensburg

Stephan Arens, Union zur Förderung von Oel- und Proteinpflanzen e.V., Berlin

Dr. Ulrich Arnold, Institut für Katalyseforschung und -technologie, KIT, Karlsruhe

Prof. Dr.-Ing. Christian Beidl, Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe, TU Darmstadt

Sascha Braun, M.Sc., Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg

Prof. Dr. med. Jürgen Bünger, Institut für Prävention und Arbeitsmedizin der DGUV, Bochum

Prof. Dr. Friedrich Dinkelacker, Institut für Technische Verbrennung, Leibniz Universität Hannover

Prof. Dr.-Ing. Joachim Dohmann, Institut für Energieforschung, Hochschule Ostwestfalen-Lippe, Lemgo

Simon J. Eiden, M.Sc., TEC4FUELS GmbH, Aachen

Prof. Dr.-Ing. Peter Eilts, Institut für Verbrennungskraftmaschinen, TU Braunschweig

Ghazaleh Esmaeelzade, M.Sc., Arbeitsgruppe Reaktionskinetik, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Stefan Essmann, M.Sc., Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig

Dipl.-Ing. Sebastian Feldhoff, TEC4FUELS GmbH, Aachen

Prof. Dr. Ravi Fernandes, Fachbereich Thermophysikalische Größen, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Prof. Dr.-Ing. Matthias Gaderer, Professur für Regenerative Energiesysteme, Technische Universität München

Felix Galli, M.Sc., früher: Institut für Technische Verbrennung, Leibniz Universität Hannover

Dipl.-Ing. (FH) Andrea Gärtner, ADAC e.V., Landsberg am Lech

Andreas Goldmann, M.Sc., Institut für Technische Verbrennung, Leibniz Universität Hannover



Dr. Holger Großhans, Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig

Michael Guschakowski, B.Sc., Institut für Ökologische und Nachhaltige Chemie, TU Braunschweig

Kathrin Hackbarth, M.Sc., Institut für Katalysatorforschung und -technologie, KIT, Karlsruhe

Philipp Haltenort, M.Sc., Institut für Katalysatorforschung und -technologie, KIT, Karlsruhe

Dr.-Ing. Hauke Hansen, Institut für Technische Verbrennung, Leibniz Universität Hannover

Dr.-Ing. Johann Hauber, Institut für Innovative Mobilität und ressourcenschonende Antriebstechnik, TH Ingolstadt

Karl Hauptmeier, M.Sc., sunfire GmbH, Dresden

Dipl.-Ing. Benedikt Heuser, ehemals: Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der RWTH Aachen University; aktuell: FEV Europe GmbH

Prof. Dr.-Ing. Karl Huber, Institut für Innovative Mobilität und ressourcenschonende Antriebstechnik, TH Ingolstadt

Dr. Olusola O. James, Institut für Ökologische und Nachhaltige Chemie, TU Braunschweig

Lennart Klare, B.Sc., Institut für Verbrennungskraftmaschinen, TU Braunschweig

Prof. Dr. Thomas A. Koch, Institut für Kolbenmaschinen, KIT, Karlsruhe

Dr.-Ing. Reinhard Kolke, ADAC e.V., Landsberg am Lech

Prof. Dr. Jürgen Krahl, Hochschule Ostwestfalen-Lippe, Lemgo

Prof. Dr.-Ing. Christian Küchen, Mineralölwirtschaftsverband e. V., Berlin

Johann-Robert Kummer, M.Sc., Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig

Dipl.-Ing. Bastian Lehrheuer, Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der RWTH Aachen University

Prof. Dr. Walter Leitner, Institut für Technische und Makromolekulare Chemie der RWTH Aachen University

Prof. Dr. Ulrich Maas, Institute of Technical Thermodynamics, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Karlsruhe



Artur Martel, M.Sc., Institut für Energieeffiziente Mobilität, Hochschule Karlsruhe

Dr. Detlev Markus, Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig

Alexander Mokros, M.Sc., Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe, TU Darmstadt

Dr. Kai Moshhammer, Arbeitsgruppe Reaktionskinetik, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Markus Münz, M.Sc., Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe, TU Darmstadt

Dr. Robert Nell, ROFA Laboratory and Process Analyzers, Kritzensdorf, Österreich

Daniel Neumann, M.Sc., Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der RWTH Aachen University

Prof. Dr.-Ing. Stefan Pischinger, Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der RWTH Aachen University

Prof. Dr.-Ing. Hans-Peter Rabl, Labor für Verbrennungsmotoren und Abgasnachbehandlung, Ostbayerische Technische Hochschule Regensburg

Prof. Dr. Jörg Sauer, Institut für Katalyseforschung und -technologie, KIT, Karlsruhe

Waldemar Sauter, M.Sc., Institut für Ökologische und Nachhaltige Chemie, TU Braunschweig

Dr. Olaf Schröder, Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg

Prof. Dr. Uwe Schröder, Institut für Ökologische und Nachhaltige Chemie, TU Braunschweig

Dipl.-Chem. (FH) Anja Singer, Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg

Dipl.-Ing. (FH) Jens Staufenbiel, Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg

Dr. Katharina Thenert, Institut für Technische und Makromolekulare Chemie der RWTH Aachen University

Dr. Olaf Toedter, Institut für Kolbenmaschinen, KIT, Karlsruhe

Martin Unglert, M.Sc., Technologietransferzentrum Automotive der Hochschule Coburg



Sonal K. Vallabhuni, M.Sc., Arbeitsgruppe Reaktionskinetik, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Dr. Uwe Wagner, Institut für Kolbenmaschinen, KIT, Karlsruhe

Marius Zubel, M.Sc., Lehrstuhl für Verbrennungskraftmaschinen der RWTH Aachen University



Mitglieder der Fuels Joint Research Group (FJRG)

Prof. Dr. med. Jürgen Bünger, IPA Bochum

Prof. Dr. Friedrich Dinkelacker, Universität Hannover

Prof. Dr.-Ing. Peter Eilts, TU Braunschweig

Prof. Dr. Ravi Fernandes, PTB Braunschweig

Prof. Dr.-Ing. Karl Huber, TH Ingolstadt

Prof. Dr. Jürgen Krahl, Hochschule Ostwestfalen-Lippe, Lemgo

Dr. Klaus Lucka, TEC4FUELS GmbH Aachen

Prof. Dr.-Ing. Axel Munack, Rötgesbüttel

Prof. Dr. Uwe Schröder, TU Braunschweig

Prof. Dr.-Ing. Dr. h. c. Helmut Tschöke, Universität Magdeburg

Prof. Dr.-Ing. Gennadi Zikoridse, HS Technik und Wirtschaft Dresden

Angaben zu den Arbeitsgebieten der Mitglieder und zu Publikationen der FJRG sind zu finden unter: www.fuels-jrg.de





FUELS JOINT RESEARCH GROUP

Die FJRG ist eine aus Ingenieuren, Naturwissenschaftlern und Medizinern interdisziplinär zusammengesetzte Forschergruppe auf dem Gebiet der Kraftstoffforschung. Die gemeinsamen Projekte untersuchen Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Kraftstoffkomponenten, dem Motor und dem Motorenöl sowie der Abgasnachbehandlung insbesondere mit Blick auf die resultierenden Emissionen und deren gesundheitliche Auswirkungen.

Der Verbrennungsmotor als das Rückgrat der Mobilität muss umwelt- und klimaschonender werden.

Die 3. Tagung der Fuels Joint Research Group befasst sich mit den Möglichkeiten, Beiträge zu dieser angestrebten Entwicklung zu leisten.

Die motorischen Abgasemissionen und der nahezu ungebremste Einsatz fossiler Ressourcen für die Mobilität stehen zunehmend in der Kritik. Um im Wettbewerb mit der Elektromobilität künftig bestehen zu können, müssen alternative Kraftstoffe den Nachweis geringer Treibhausgasemissionen erbringen und Nutzungskonkurrenzen ihrer Rohstoffe und ihres Flächenbedarfs mit der Nahrungsmittelproduktion weitgehend vermeiden. Unter technischen Gesichtspunkten sind die Wechselwirkungen künftiger Kraftstoffe mit konventionellen und anderen alternativen Kraftstoffen sowie mit dem Motor und dem Motorenöl und nicht zuletzt der Abgasnachbehandlung zu untersuchen. Die Betriebssicherheit und Lebensdauer von Anwendungstechnologien mit neuen Kraftstoffen muss gesichert bleiben. Schließlich sind auch – gerade bei Verwendung biogener Kraftstoffkomponenten – die politischen Rahmenbedingungen zu berücksichtigen.

