

Vakuumisolationspaneele- Gas- und Feuchteeintrag sowie Feuchte- und Wärmetransport

Dissertation zur Erlangung des naturwissenschaftlichen Doktor-
grades der Bayerischen Julius-Maximilians-Universität
Würzburg

vorgelegt von
Hubert Schwab
aus Dingolshausen

Würzburg, 2004

Eingereicht am:

bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter:

2. Gutachter:

3. Gutachter:

der Dissertation

1. Prüfer:

2. Prüfer:

3. Prüfer:

im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums:

Doktorurkunde ausgehändigt am

Ausgefertigt aufgrund des Beschlusses des Senats der Universität Würzburg
vom und der Genehmigung des Präsidenten der Universität
Würzburg vom

Würzburg, den

Zusammenfassung

Gegenstand der Untersuchung waren der Stoff- und Wärmetransport innerhalb von Vakuumisolationspaneelen (VIP) aus pyrogener Kieselsäure und der Stofftransport durch Folienumhüllungen in VIPs hinein. Erstmals wurde an diesen VIPs der Gas- und Feuchteintrag im Lauf der Zeit systematisch gemessen. Beide Effekte haben einen entscheidenden Einfluss auf den Stoff- und Wärmetransport und somit auf die Wärmeleitfähigkeit. VIPs aus pyrogener Kieselsäure haben im trocknen, evakuierten Zustand eine um den Faktor 10 niedrigere Wärmeleitfähigkeit im Vergleich mit konventionellen Dämmmaterialien. Um diese Eigenschaft über lange Zeiträume zu erhalten, muss die Durchlässigkeit der Folienumhüllung für Luft und Wasserdampf ausreichend niedrig sein. Ziel war es, die Luft- und Wasserdampfdurchlässigkeit der Folienumhüllung in Abhängigkeit der wichtigsten Einflussparameter (Folientyp, Paneelformat, Temperatur und relative Luftfeuchte) zu bestimmen. Die zugehörigen Druckanstiege wurden an den folienumhüllten VIPs mittels Folienabhebeverfahren gemessen, die Wassergehaltszunahme wurde über Wägung der VIPs ermittelt. Darüber hinaus wurde das Stoff- und Wärmetransportverhalten im VIP untersucht. Schwerpunkt dieser Untersuchung war der gekoppelten Wärme- und Feuchtetransport im VIP. Insbesondere sollte die Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Feuchte ermittelt werden, um den feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeitsanstieg durch eindringenden Wasserdampf abschätzen zu können.

Die Durchlässigkeitsuntersuchungen wurden mit drei verschiedenen Folienumhüllungen durchgeführt: eine Aluminiumverbundfolie (AF) und zwei metallbedampfte Mehrschichtfolien (MF). Die wichtigsten Ergebnisse der Durchlässigkeitsuntersuchungen lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Die Luftgase N_2 und O_2 dringen zu einem beträchtlichen Teil über die Siegelnaht und nicht nur über die Fläche in das VIP ein. Der Druckanstieg im Lauf der Zeit ist deswegen abhängig von der Paneelgröße.
- Bei hohen Luftfeuchten wird der Druckanstieg durch den eindringenden Wasserdampf erhöht. Bei metallbedampften Folien kann die Druckzunahme durch Wasserdampf höher sein als durch die Luftgase. Der sich einstellende Wasserdampfdruck wird bei gegebenem Wassergehalt im VIP durch die Sorptionsisotherme der pyrogenen Kieselsäure bestimmt.
- Die Luftdurchlässigkeit der Folienumhüllung hängt von der Temperatur ab und lässt sich durch einen Arrheniusansatz beschreiben.
- Insgesamt konnte gezeigt werden, dass bei Verwendung hochwertiger Folien (Flächendurchlässigkeit der Folie $< 0,001 \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$) und für VIPs mit typischen Größen ($\geq 50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$) ein Druckanstieg unter 1 mbar/a bei Raumtemperatur typisch ist.
- Wasserdampf dringt überwiegend über die Folienfläche in das VIP ein. VIPs mit AF-Folien weisen äußerst niedrige Wasserdampfdurchlässigkeiten auf, während bei metallbedampften Folien die Durchlässigkeit stark von der Folienqualität abhängig ist ($< 0,001 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$) für AF- und $0,005$ bis

0,05 g/(m²·d) für MF-Folien bei 23 °C / 75 % r.F.). Daraus resultiert ein Anstieg des Wassergehalts von < 0,1 M-%/a bei 2 cm dicken VIPs mit AF-Folien. Bei MF-Folien liegen die Anstiege ungefähr bei 0,1 bis 1 M-%/a. Hohe Wassergehalte beeinflussen die Wärmeleitfähigkeit .

- Mit steigendem Wassergehalt nimmt der Dampfdruck im VIP zu und der Dampfdruckgradient an der Umhüllung ab. Mit der Zeit stellt sich, je nach Klimabedingung, ein Gleichgewichtswassergehalt im VIP ein. Es wurde eine Beziehung abgeleitet, mit der sich der Wassergehaltsanstieg mit der Zeit für konstante, mittlere Klimabedingungen abschätzen lässt. Eine lineare zeitliche Extrapolation der Wassergehaltszunahme ist nicht zulässig.

Ingesamt hängen Druck- und Wassergehaltsanstieg von VIPs aus pyrogener Kieselsäuren neben dem verwendeten Folientyp vom Paneelformat und von den variierenden Klimabedingungen ab. Es wurde ein numerisches Modell erstellt, mit dem die Druck- und Wassergehaltsanstiege von VIPs in Abhängigkeit von Folie, Paneelformat und Klima (Temperatur, Luftfeuchte und Dampfdruck) berechnet werden können. Die Simulationsrechnungen wurden anhand von Vergleichsmessungen an VIPs, die unter realen Klimabedingungen eingebaut waren, überprüft. Es zeigt sich eine befriedigende Übereinstimmung.

Der zeitabhängige Wärmetransport in feuchten VIPs lässt sich charakterisieren, indem man den Wärmefluss misst, der von der Heizplatte einer Plattenapparatur in das VIP fließt. Die Temperaturdifferenz hat einen Dampfdruckgradienten mit Latentwärmehtransport zur Folge. Durch den Latentwärmehtransport wird der Wärmefluss vor allem zu Beginn der Messung deutlich erhöht (bei hohen Wassergehalten von 10 M-% um annähernd einen Faktor 10 relativ zur Messung an trockenen VIPs). Im Lauf der Zeit wird der Dampfdruckgradient im VIP durch die Feuchteumlagerung abgebaut, der Wärmefluss nimmt ab und erreicht einen stationären Wert, dem eine vom Wassergehalt abhängige Wärmeleitfähigkeit zugeordnet werden kann. Bei hohen Wassergehalten > 10 M-% wird der stationäre Zustand erst nach über 12 h erreicht. Die Wärmeleitfähigkeit in feuchten VIPs erhöht sich durch die Wärmeleitfähigkeit des Wasserdampfes und durch die Wärmeleitung des gebundenen Wassers. Bis zu 10 M-% nimmt die Wärmeleitfähigkeit annähernd linear mit dem Wassergehalt zu. Bei 10 °C wurde eine Zunahme der Wärmeleitfähigkeit von etwa $0,5 \cdot 10^{-3}$ W/(m·K·M-%) pro massebezogenem Wassergehalt ermittelt.

Aus den Untersuchungen lässt sich das Langzeitverhalten der Wärmeleitfähigkeit von VIPs aus pyrogener Kieselsäure ableiten:

Betrachtet man vor allem Anwendungen im Baubereich mit Einsatzdauern von etwa 50 Jahren, dann kann bei typischen Temperaturen und Luftfeuchten ein Anstieg von 0,004 W/(m·K) auf etwa 0,006 W/(m·K) bis 0,008 W/(m·K) in 50 Jahren abgeschätzt werden. Damit ist die prinzipielle Eignung von VIPs für lange Anwendungszeiträume bis 50 Jahre gezeigt. Dabei wurde dargestellt, welche Eigenschaften die Folien haben müssen und bei welchen Randbedingungen diese Aussagen gelten. Diese Bedingungen müssen bei der Anwendung von VIPs beachtet werden.

Summary

The subjects under investigation were material and heat transfer within vacuum insulation panels (VIPs) made of fumed silica as well as the material transfer through foil envelopes into VIPs. For the first time, gas and moisture permeation into VIPs were measured systematically. Both gas and moisture permeation have a decisive influence on material and heat transfer and therefore also on thermal conductivity. When dry and evacuated, these VIPs have a thermal conductivity which is a factor of ten lower than conventional insulation materials. To maintain this low thermal conductivity in the long term, the foil envelope must be sufficiently impervious to air and water vapour. The objective, therefore, was to determine the air and water vapour permeability of the foil envelope with reference to the most influential parameters (type of foil, panel size, temperature and relative humidity). The corresponding pressure increases in the foil-encased VIPs were measured by way of a foil lifting technique and the rise in water content was determined by weighing the VIPs. The material and heat transfer behaviour within the VIPs was also examined. It was particularly important to identify the thermal conductivity in relation to the moisture to be able to estimate the increase in thermal conductivity due to permeating water vapour.

The investigations into permeability were carried out using envelopes made of three different foils: an aluminium composite foil (AF) and two metallized multi-layer foils (MF). The most important results from these investigations can be summarized as follows:

- N_2 and O_2 from the air penetrate the VIP to a large extent through the seam and not just through the surface. The increase in pressure over time is therefore dependent on the size of the panel.
- At high humidities, the rise in pressure is further increased by the penetrating water vapour. Where metallized foils are concerned, the pressure increase can be more due to water vapour than dry air gases. The water vapour pressure can be determined via the water content and the fumed silica's sorption isotherms.
- The air permeability of the foil envelope is temperature dependent and can be expressed using the Arrhenius dependency.
- As far as high-quality foils (surface permeance $< 0.001 \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ and typically sized VIPs ($\geq 50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$) are concerned, a pressure increase under 1 mbar/a at room temperature can be reached.
- Water vapour penetrates the VIP mostly through the surface. VIPs with aluminium foils have very low water vapour transmission rates (WVTR), whereas the WVTR of metallized foils is particularly dependent on the quality of the foil ($< 0.001 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ for aluminium foils and 0.005 to 0.05 $\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ for multi-layer foils at $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ \% r.h.}$). This causes the water content to rise from $< 0.1 \text{ M-\%/a}$ with 2 cm thick VIPs with aluminium foils. With multi-layer foils, the increase is approximately 0.1 to 1 M-\%/a . High water content influences the thermal conductivity.

- When the water content rises, the vapour pressure in the VIP increases and the vapour pressure gradient on the envelope decreases. The water content inside the VIP reaches equilibrium over time and according to the given climatic conditions. A relation was deduced to estimate the rise in water content over time in constant, average climatic conditions. Linear, temporal extrapolation of the rise in water content is not permissible.

Apart from the type of foil used in the VIP envelope, the pressure and water content increases in VIPs made of fumed silica depend on the size of the panel and varying climatic conditions. A numerical model was generated to calculate the increase in pressure and water content in VIPs in relation to the foil, panel size and climate (temperature, humidity and vapour pressure). The simulations were verified using comparative measurements carried out on VIPs installed under real climatic conditions; satisfactory agreement was achieved.

The time-dependent heat transfer in moist VIPs can be characterized by measuring the heat flux that flows into the VIP from the hot plate of a plate apparatus. The result of the temperature difference is a vapour pressure gradient with latent heat transfer. The latent heat transfer increases the heat flux particularly at the beginning of the measurement (with high water contents of 10 M-% by almost a factor of ten relative to dry VIPs). Over time, the vapour pressure gradient in the VIP is reduced due to the shift in moisture and the heat flux decreases and reaches a steady value which can be allocated a thermal conductivity dependent on the water content. With high water contents > 10 M-%, the steady state is only reached after 12 hours. The thermal conductivity in moist VIPs increases due to the thermal conductivity of the water vapour and due to the thermal conduction of the water. Up to 10 M-%, the thermal conductivity increases almost linearly with the water content. An increase in thermal conductivity of approximately $0.5 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{M}\cdot\%)$ per mass-related water content was determined at 10 °C.

The long-term behaviour of the fumed silica VIPs' thermal conductivity can be derived from these investigations:

When considering, in particular, building applications with service lives of approximately 50 years, one can estimate an increase from 0.004 W/(m·K) to between 0.006 W/(m·K) and 0.008 W/(m·K) in 50 years' time. VIPs are therefore principally suitable even for long-term applications. The foil properties and conditions that must be fulfilled to achieve such a long-term service life have been identified and must be considered when implementing VIPs.

1 EINLEITUNG	1
1.1. Motivation	1
1.2. Das Prinzip der Vakuumdämmung	1
1.3. VIPs aus pyrogener Kieselsäure	2
1.4. Zielsetzung.....	3
2 GRUNDLAGEN	5
2.1. Wärmetransport in trockenen VIPs.....	5
2.1.1. Theoretische Betrachtungen zum Wärmetransport	5
2.1.2. Gaswärmeleitung in Vakuumisulationspaneelen	6
2.1.3. Strahlungswärmeleitung in Vakuumisulationspaneelen.....	9
2.1.4. Festkörperwärmeleitung in Vakuumisulationspaneelen.....	11
2.2. Wärmetransport in feuchten Materialien	13
2.2.1. Vorüberlegungen	13
2.2.2. Sorptionsisotherme.....	13
2.2.3. Einfluss des Sorptionsverhaltens auf den Wärmetransport	15
2.2.4. Wärmetransport in feuchten, nichtevakuierten Materialien	16
2.2.5. Wärmetransport in feuchten VIPs aus pyrogener Kieselsäure ..	17
2.3. Instationärer Wärme- und Feuchtetransport.....	19
2.3.1. Berechnungsmodell	19
2.3.2. Stationäre Betrachtung mit und ohne Heat-Pipe-Effekt	21
2.3.3. Quasistationäre Betrachtungen	22
2.3.4. Numerische Umsetzung	23
2.3.5. Numerische Beispielrechnungen	25
2.3.5.1 Instationärer Temperaturverlauf im VIP.....	26
2.3.5.2 Instationärer Feuchteverlauf im VIP	28
2.4. Durchlässigkeit von Folienumhüllungen	31
2.4.1. Permeation durch reinen Kunststoff.....	31
2.4.2. Durchlässigkeit von Mehrschichtfolien mit anorganischen Sperrschichten.....	34
2.4.3. Durchlässigkeit der VIP-Folienumhüllung	35
3 MESSVERFAHREN UND MESSPROGRAMME	38
3.1. Folienabhebeverfahren und Wägung	38

3.2. Verfahren zur Messung der Wärmeleitfähigkeit.....	40
3.3. Programm zur Bestimmung der Durchlässigkeiten von VIPs	41
3.4. Präparation feuchter VIPs	43
4 MESSUNGEN UND DISKUSSION	44
4.1. Wärmeleitfähigkeitsmessungen	44
4.1.1. Messergebnisse der Wärmeleitfähigkeitsmessungen	44
4.1.1.1 Stationäre Wärmeleitfähigkeit in feuchten VIPs	44
4.1.1.2 Instationärer Wärmetransport im VIP	46
4.1.2. Diskussion der Wärmeleitfähigkeitsmessungen	47
4.1.2.1 Diskussion der stationären Messungen	47
4.1.2.2 Diskussion instationäre Messungen.....	50
4.1.3. Bewertung Wärmeleitfähigkeitsmessungen	52
4.2. Klimaeinfluss auf Druck- und Massenanstieg.....	52
4.2.1. Messergebnisse bei variablen Klimabedingungen	52
4.2.1.1 Druckanstiege bei variablen Klimabedingungen	52
4.2.1.2 Massenzunahmen bei variablen Klimabedingungen....	54
4.2.2. Diskussion des Klimaeinflusses	55
4.2.2.1 Einfluss der Feuchte auf den Druckanstieg	55
4.2.2.2 Einfluss der Temperatur auf die Luftdurchlässigkeit	57
4.2.2.3 Einfluss von Temperatur und relativer Feuchte auf die Wasserdampfdurchlässigkeit	58
4.2.3. Bewertung Klimaeinfluss.....	59
4.3. Einfluss der VIP-Größe auf Druck- und Massenanstieg	60
4.3.1. Messergebnisse bei unterschiedlichen Paneelgrößen	60
4.3.1.1 Luftdruckanstieg bei verschiedenen Paneelgrößen	60
4.3.1.2 Massenzunahme bei verschiedenen Paneelgrößen	66
4.3.1.3 Druckanstieg durch Luft und Wasserdampf bei verschiedenen Paneelgrößen	70
4.3.2. Diskussion Einfluss Paneelgröße.....	72
4.3.2.1 Einfluss des Wasserdampfes auf Massenzunahme und Druckanstieg.....	72
4.3.2.2 Einfluss der Luft auf den Druckanstieg	76
4.3.2.3 Einfluss von Luft und Wasserdampf auf den Druckanstieg.....	78
4.3.2.4 Bewertung des Einflusses der Paneelgröße.....	80
4.4. Anwendung: Messung an gebäude-installierten VIPs.....	81
5 AUSBLICK	85

Symboltafel

Lateinische Symbole:

D	Diffusionskoeffizient oder Probendicke
E	Extinktionskoeffizient oder Aktivierungsenergie
F	Fläche eines VIPs
J	Teilchenstromdichte
K	Feuchteleitkoeffizient oder Kantenlänge
Kn	Knudsenzahl
L	Umfang eines VIPs
N	Avogadrokonstante
P	Permeabilität bzw. Permeationskoeffizient
Q	Durchlässigkeit
R	allgemeine Gaskonstante
S	Löslichkeitskoeffizient
T	Temperatur
V	Volumen
X	Wassergehalt
a	Feuchtezuschlagskoeffizient (absolut)
b	Feuchtezuschlagskoeffizient (relativ)
c	Wärmekapazität oder Lichtgeschwindigkeit
d	Porendurchmesser
e	massenspezifische Extinktion
f	Fläche
h	Enthalpie
k	Boltzmannkonstante
l	mittlere freie Weglänge
m	Masse
p	Druck
q	Wärmestromdichte
u	innere Energie
v	Geschwindigkeit
w	Wassergehaltskonzentration

Griechische Symbole

α	Akkommodationskoeffizient
β	gasartabhängiger Faktor
χ	Wasserleitkoeffizient
δ	Diffusionsleitkoeffizient
γ	Adiabatexponent
φ	relative Feuchte
ϑ	Temperatur in °C
λ	Wärmeleitfähigkeit
Λ	Wärmedurchlasskoeffizient
μ	Wasserdampfwiderstandszahl

ρ	Rohdichte
σ	Stefan-Boltzmann-Konstante

Indizes (abgekürzt):

a	außen
Ad	Adsorption
D	Dampf
evac	evakuiert
F	pro Fläche
FK	Festkörper
ges	gesamt
i	innen
φ	relative Feuchte
k	kalt
L	Luft oder pro Umfang
m	gemittelt oder massebezogen
mol	molar
Sat	Sattdampf
Str	Strahlung
tr	trocken
v	volumenbezogen oder bei konstantem Volumen
VIP	Vakuuminisulationspaneel
w	Wasser oder warm

ungekürzte Indizes:

Dampf	Dampf
Diffusion	Diffusionstransport
frei	freies Gas
Gas	Gas
Luft	Luft
molekular	Molekulartransport

1 Einleitung

1.1. Motivation

Hocheffiziente, superisolierende Vakuumdämmungen haben Wärmeleitfähigkeiten, die in etwa um einen Faktor zehn niedriger sind als bei konventionellen Dämmstoffen (s. Abbildung 1-1). Der Einsatz dieser hocheffizienten Dämmungen in verschiedenen Anwendungsbereichen, z.B. für Kühlgeräte, Kühltransporte, Warmwasserspeicher und Gebäudehüllen, bietet neue energiesparende Lösungsansätze. Vor allem im Baubereich ist, wie eine Analyse der deutschen Energiestatistik zeigt, das Einsparpotenzial sehr groß. So trägt der Bedarf an Raumheizwärme mit einem Drittel zum deutschen Endenergieverbrauch bei [Umw1997]. Energieeinsparmaßnahmen im Gebäudebereich, insbesondere eine gute Dämmung der Gebäudehülle, bergen ein hohes Energie- und CO₂-Einsparpotential. Große Dämmschichtdicken, die aus energetischer Sicht wünschenswert sind, haben jedoch Nachteile, wie z.B. tiefe Fensteröffnungen mit ungünstigem Lichteinfall, und können oft aufgrund baulicher Vorgaben nicht umgesetzt werden. Gerade im Sanierungsbereich, in dem ein besonders hohes Energieeinsparpotenzial vorhanden ist, sind große Dämmschichtdicken nicht realisierbar. Dies betrifft etwa Häuser mit geringem Dachüberstand oder Lagen mit Grenzbebauung. Mit der in dieser Arbeit untersuchten Vakuumdämmung lassen sich große Dämmschichtdicken vermeiden, da 2 cm dieser Vakuumdämmung die gleiche Dämmwirkung aufweisen wie etwa 20 cm konventionelle Dämmung aus Polystyrol. Mit einer um den Faktor 10 dünneren Dämmung wird eine deutliche Platzeinsparung erreicht, was z.B. bei verdichteter Bauweise in Innenstädten wirtschaftlich sehr vorteilhaft sein kann. Der Baubereich ist ein sehr interessanter Anwendungsbereich für die Vakuumdämmung, stellt aber auch aufgrund der langen Anwendungszeiträume und der unterschiedlichen Klimabedingungen besonders hohe Anforderungen an die Vakuumdämmung. Dass Vakuumdämmung überhaupt für den langfristigen technischen Einsatz geeignet ist, muss durch entsprechende Untersuchungen nachgewiesen werden, die zum Teil in dieser Arbeit durchgeführt werden.

1.2. Das Prinzip der Vakuumdämmung

Das Prinzip der Vakuumdämmung beruht auf der Unterdrückung der Gaswärmeleitung durch Absenken des Gasdrucks in dem zu isolierenden Volumen. Dabei muss der Druck soweit abgesenkt werden, dass die Gasmoleküle nicht mehr miteinander, sondern nur noch mit den Volumenrändern stoßen (ballistischer Transport). In dieser Arbeit wird der Wärme- und Feuchtetransport in sogenannten Vakuumisolationspaneelen (VIP) untersucht. Diese VIPs bestehen aus einem plattenförmigen, hochporösen Kernmaterial und einer vakuumdichten Umhüllung. Der Kern muss offenporig und evakuierbar sein. Darüber hinaus muss er die Belastung durch den Atmosphärendruck aufnehmen können. Der erforderliche Restgas-Druck zur Unterdrückung der Gaswärmeleitung hängt von der Größe der Poren im Kernmaterial ab. Je feiner die Poren des Kernmaterials, umso geringer

sind die Anforderungen an den Restgas-Druck. Verschiedene Füllmaterialien wurden in der Vergangenheit untersucht. Typische Füllmaterialien sind offeneporige Schäume auf Basis von Polystyrol [Ben1999], Polyurethan [Vos1994] oder Faserdämmstoffe, z.B. getemperte Glasfaserboards [Cap1996], und Pulver wie z.B. Perlite oder nanostrukturierte Kieselsäuren [Cap2001]. Abbildung 1-1 zeigt die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vom Gasdruck für verschiedene Materialien.

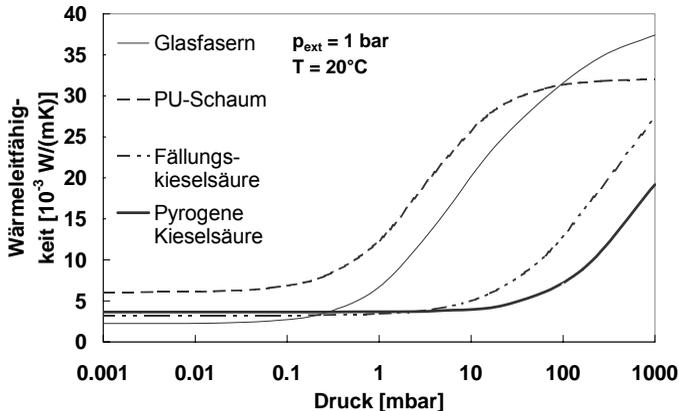


Abbildung 1-1: Wärmeleitfähigkeit poröser Materialien, belastet mit $10^5 \text{ N/m}^2 = 1 \text{ bar}$ externem Druck, in Abhängigkeit vom Gasdruck (N_2) bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ [Hei1999].

Bei Glasfasern und Schäumen mit mittleren Porendurchmessern von $20\text{-}200 \mu\text{m}$ muss der Druck kleiner $0,01 - 0,1 \text{ mbar}$ sein, um die Gaswärmeleitung zu unterdrücken. Bei Kieselsäurepulvern, insbesondere bei der pyrogenen Kieselsäure mit mittleren Porendurchmesser von $0,2 \mu\text{m}$, ist die Gaswärmeleitung noch bei 10 mbar weitestgehend unterdrückt und selbst bei Atmosphärendruck ist die Gaswärmeleitfähigkeit nur etwa zur Hälfte ausgeprägt. Während bei grobporigen Materialien wie Glasfasern UHV-dichte Umhüllungen, z.B. aus Edelstahl, erforderlich sind, lassen sich bei VIPs mit Kieselsäure besonders gasdichte Folien mit anorganischen Sperrschichten als Umhüllung verwenden. In dieser Arbeit werden ausschließlich VIPs mit pyrogener Kieselsäure als Kernmaterial und Kunststofffolien mit metallischen Sperrschichten als Umhüllung untersucht. Diese VIPs lassen sich relativ einfach und kostengünstig fertigen.

1.3. VIPs aus pyrogener Kieselsäure

Pyrogene Kieselsäure wird durch Verbrennung von Chlorsilan (SiCl_4) in einer Wasser-Sauerstoffflamme erzeugt. Die Primärteilchen sind amorph, nicht mikroporös und etwa $10 - 30 \text{ nm}$ groß. Sie verschmelzen in der Flamme zu Aggregaten mit einem Durchmesser von $100 - 500 \text{ nm}$. Beim Abkühlen entstehen $10 - 100 \mu\text{m}$ große Agglomerate. Chemisch betrachtet sind die Partikel aus SiO_4 -Tetraedern aufgebaut, die durch Siloxanbrücken (Si-O-Si) verbunden sind. An der Oberfläche der Partikel ist etwa an jedem zweiten Si-Atom eine OH-Gruppe ange-

lagert. Dies entspricht etwa 2 sog. Silanolgruppen pro nm^2 . Als reaktionsfähige Zentren verleihen die Silanolgruppen dem Material seinen hydrophilen Charakter und seine rheologischen Eigenschaften. Abbildung 1-2 zeigt den Herstellprozess und eine SEM-Aufnahme der pyrogenen Kieselsäure.

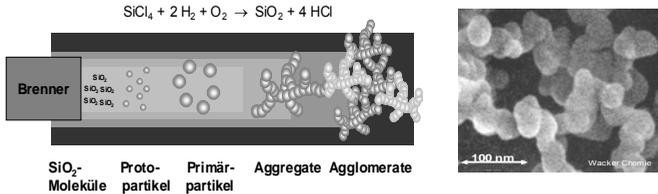


Abbildung 1-2: Herstellprozess der pyrogenen Kieselsäure (links) und eine Feld-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme des Pulvers (rechts) [Wac2001].

Je nach Steuerung des Brennprozesses lassen sich die Eigenschaften der pyrogenen Kieselsäure verändern. Die für die Herstellung von VIPs verwendete Kieselsäure (Wacker HDK[®] T30) weist eine große spezifische Oberfläche von ca. 300 m^2/g auf [Wac2002]. Für die Verwendung in VIPs wird das Pulver mit Fasern und einem Infrarottrübungsmittel zur Unterdrückung des Strahlungstransportes vermischt und zu Platten mit einer Rohdichte zwischen 150 – 180 kg/m^3 verpresst. Die effektiven mittleren Porenweiten liegen dann bei etwa 0,2 μm . Die Platten werden mit speziellen Folien oder Folienbeuteln umhüllt, evakuiert und abschließend im Vakuum versiegelt. Abbildung 1-3 zeigt den Querschnitt eines VIPs und ein VIP im Vergleich mit einer konventionellen Dämmung. Das 2 cm dicke VIP hat die gleiche Dämmwirkung wie eine 20 cm dicke konventionelle Dämmung aus Polystyrol.

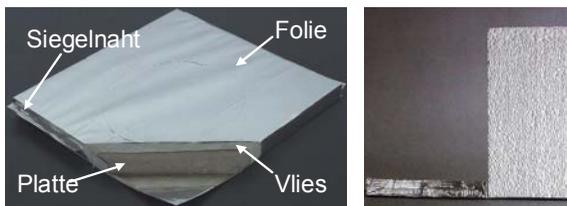


Abbildung 1-3: Querschnitt eines VIPs und Vergleich äquivalenter Dämmschichtdicken eines VIPs mit konventioneller Dämmung [Sch2001].

1.4. Zielsetzung

Die für die Dämmwirkung charakteristische Kenngröße der Vakuuminisationspaneele ist die Wärmeleitfähigkeit. Für den technischen Einsatz der Vakuuminisationspaneele muss nachgewiesen werden, dass die Wärmeleitfähigkeit im Anwendungszeitraum durch eindringende Gase nicht wesentlich ansteigt. Das wesentliche Ziel dieser Arbeit ist es, das Langzeitverhalten, insbesondere das Degradationsverhalten der Dämmwirkung, von VIPs aus pyrogenen Kieselsäure mit Folienumhüllungen zu untersuchen. Die Dämmwirkung bzw. die Wärmeleitfähigkeit von Vakuuminisationspaneelen hängt von der Dichtigkeit der

Vakuumisolationspaneelen hängt von der Dichtigkeit der Umhüllung und vom Kernmaterial ab. Die Umhüllung bestimmt, welche Gasmengen pro Zeiteinheit in das VIP eindringen. Das Kernmaterial legt fest, wie diese Gase, v.a. trockene Luftgase und Wasserdampf, zum Anstieg der Wärmeleitfähigkeit beitragen. In dieser Arbeit werden zwei Schwerpunkte bei den Untersuchungen der VIPs gesetzt:

- Zum einen wird der Stofftransport durch die Folienumhüllung untersucht. Hierzu werden Messungen des Druckanstiegs und der Massenzunahme an VIPs mit verschiedenen Folientypen, bei verschiedenen Klimabedingungen (Temperatur und Luftfeuchte) und für verschiedene Paneelformate durchgeführt, um die Durchlässigkeit der Folienumhüllung für trockene Luftgase und für Wasserdampf zu bestimmen. Ziel ist es, die Durchlässigkeit der Umhüllung zu ermitteln und ein Modell zu erstellen, das eine Vorhersage der Druckanstiege durch eindringende Luftgase und der Massenzunahme durch eindringenden Wasserdampf ermöglicht.
- Zum anderen wird für pyrogene Kieselsäure als Kernmaterial der Einfluss der eindringenden Gase auf den Wärme- und Stofftransport im VIP untersucht, insbesondere der Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit. Die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vom Gasdruck trockener Gase, v.a. Stickstoff, wurde bereits umfassend untersucht, z.B. [Hei1999]. Der Schwerpunkt der Untersuchung in dieser Arbeit bezieht sich vor allem auf den Einfluss der Feuchte im VIP auf die Wärmeleitfähigkeit. Mit Kenntnis der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit vom Gasdruck und Feuchte und mit Kenntnis der eindringenden Gasmengen kann der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit, d.h. die Degradation der Dämmwirkung mit der Zeit, vorhergesagt werden.

Eine Degradation der Dämmwirkung ist auch von anderen Dämmstoffen, z.B. bei PU-Schäumen mit schweren Füllgasen, bekannt. Ähnlich wie bei diesen Dämmstoffen muss die Degradation der Dämmwirkung bzw. der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit von VIPs im Anwendungszeitraum abgeschätzt werden. Im Unterschied zu konventionellen Dämmstoffen kann sich die Wärmeleitfähigkeit bei VIPs im worst-case-Fall, d.h. bei Verletzung der Umhüllung, um den Faktor 5 erhöhen. Im Regelfall (unbeschädigte Hülle) empfiehlt es sich, eine maximal zulässige Wärmeleitfähigkeit festzulegen. Der Zeitraum, in dem diese zulässige Wärmeleitfähigkeit nicht überschritten wird, lässt sich als Funktions- oder Lebensdauer der VIPs charakterisieren. Um VIPs im Baubereich einsetzen zu können, müssen Lebensdauern von mehreren Jahrzehnten erreicht werden. Die Untersuchungen in dieser Arbeit beziehen sich hier nur auf eine Degradation der Dämmwirkung durch eindringende Luftgase und Wasserdampf. Ein Anstieg der Foliendurchlässigkeit durch Alterung wird nicht betrachtet.

2 Grundlagen

2.1. Wärmetransport in trockenen VIPs

2.1.1. Theoretische Betrachtungen zum Wärmetransport

Der Wärmetransport in einem homogenen Kontinuum lässt sich durch den Fourier'schen Erfahrungssatz beschreiben:

$$\vec{q}(\vec{x}) = -\lambda(\vec{x}) \cdot \text{grad}(T(\vec{x})), \quad (2-1)$$

wobei q die Wärmestromdichte, T die Temperatur, und λ die Wärmeleitfähigkeit darstellen. Die Wärmeleitfähigkeit in einem homogenen Kontinuum ist eine materialspezifische Größe, die temperaturabhängig und bei anisotropen Materialien richtungsabhängig sein kann. Für eine Probe der Dicke D_{Probe} mit temperaturunabhängiger Wärmeleitfähigkeit λ , über der sich eine zeitlich konstante Temperaturdifferenz ΔT ausgebildet hat, erhält man die stationäre Gleichung

$$q = \lambda \cdot \frac{\Delta T}{D_{\text{Probe}}}. \quad (2-2)$$

Die Wärmeleitung wird oft als Diffusionsprozess von Teilchen, z.B. Gasmolekülen, und Quasiteilchen, z.B. Photonen und Phononen, mit folgender Gleichung beschrieben:

$$\lambda = \frac{1}{3} \cdot v_m \cdot l_m \cdot \frac{du}{dT}. \quad (2-3)$$

Bei exakter mikroskopischer Betrachtung muss in Gleichung (2-3) anstelle der Mittelwerte (Index m) die freie Weglänge l und die Energiedichte u in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit v eines Teilchens angesetzt und über die statistische Geschwindigkeitsverteilung integriert werden.

Die Wärmeleitfähigkeit lässt sich nur dann als Diffusionsprozess beschreiben, wenn die mittlere freie Weglänge l_m viel kleiner ist als die Abmessung des betrachteten Volumens d . Falls die Bedingung $l_m \ll d$ nicht gilt, können Randeffekte auftreten und die Wärmeleitfähigkeit wird von den Eigenschaften der Berandung abhängig. Sie ist dann keine reine Materialeigenschaft mehr, d.h. keine „echte“ Wärmeleitfähigkeit, und wird deswegen als Pseudowärmeleitfähigkeit bezeichnet. Im Extremfall $l_m \gg d$ spricht man vom ballistischen Transport; die Teilchen stoßen dann praktisch nur noch mit der Berandung, z.B. den Porenwänden.

Das Diffusionsmodell beschreibt die Wärmeleitung in einem homogenen Festkörper als Phononentransport, im ruhenden Gas als Molekültransport und in optisch dicken Medien als Photonentransport. Je nach Teilchenart ändert sich die freie

Weglänge, die Energiedichte und die Geschwindigkeitsverteilung in Gleichung (2-3). In einem porösen trockenen Festkörper sind im Wesentlichen diese drei Transportmechanismen am Wärmetransport beteiligt (Wärmetransport über Konvektion kann in kleinen Poren vernachlässigt werden). Allerdings können sich die einzelnen Transportprozesse beeinflussen. Insgesamt lässt sich die Wärmeleitfähigkeit in einem trockenen porösen Festkörper folgendermaßen angeben:

$$\lambda = \lambda_{\text{FK}} + \lambda_{\text{Str}} + \lambda_{\text{Gas}} + \lambda_{\text{Kopplung}} , \quad (2-4)$$

mit den Wärmeleitfähigkeiten über das Festkörpergerüst λ_{FK} , über das Gas λ_{Gas} und über die Strahlung λ_{Str} . $\lambda_{\text{Kopplung}}$ beschreibt Kopplungseffekte zwischen diesen Wärmeleitfähigkeiten. $\lambda_{\text{Kopplung}}$ ist vernachlässigbar in Schäumen mit durchgehendem Festkörperskelett, dagegen merklich in Faserdämmungen, wo im evakuierten Zustand Faserkontakte, gleichsam als Punktkontakte, ausgeprägte Wärmewiderstände darstellen; diese werden im belüfteten Zustand durch die Gaswärmeleitung praktisch kurzgeschlossen. Auch für Pulverdämmungen, vor allem solchen aus massiven, gut wärmeleitenden Körnern, ist der Kopplungseffekt merklich. Im Folgenden werden die einzelnen Transportmechanismen erläutert.

2.1.2. Gaswärmeleitung in Vakuumisulationspaneelen

Gaswärmeleitung findet in Vakuumisulationspaneelen in den Poren des Kernmaterials statt. Die Poren stellen die Berandung für die Molekülstöße dar. Die Wärmeleitfähigkeit des Porengases hängt vom Verhältnis der freien Weglänge l_m der Gasmoleküle zum mittleren Porendurchmesser d ab ($Kn := l_m/d$). Kn wird als Knudsenzahl bezeichnet. Für $Kn \ll 1$, d.h. es finden vorwiegend Molekül-Molekül-Stöße statt, kann das Porengas wie ein freies ruhendes Gas nach dem Diffusionsmodell beschrieben werden. Mit $du/dT = \rho \cdot c_v$ in Gleichung (2-3) ergibt sich mit Berücksichtigung der Boltzmannschen Transportgleichung für mehratomige Moleküle folgende Beziehung für die Wärmeleitfähigkeit des freien Gases [Hir1966]:

$$\lambda_{\text{Gas,frei}} = \frac{5 \cdot \pi}{32} \cdot \frac{9 \cdot \gamma - 5}{4} v_m \cdot l_m \cdot \rho \cdot c_v = \frac{5 \cdot \pi}{16} \cdot \frac{9 \cdot \gamma - 5}{4} \cdot \frac{(\pi \cdot k_B \cdot T)^{3/2}}{(N_A \cdot M_{\text{mol}})^{1/2}} \cdot \frac{c_{v,\text{mol}}}{\sigma_0} , \quad (2-5)$$

mit k_B = Boltzmannkonstante, N_A = Avogadrokonstante, M_{mol} = Molare Masse, $c_{v,\text{mol}}$ = molare Wärmekapazität des Gases, ρ = Dichte des Gases, $\gamma := c_p/c_v$ = Adiabatenexponent und σ_0 = Stoßquerschnitt der Gasatome. Die Wärmeleitfähigkeit des freien Gases hängt somit von der Gasart, von der Temperatur, aber nicht vom Gasdruck ab.

Für $Kn \gg 1$, d.h. es finden überwiegend Molekül-Wand-Stöße statt, spricht man von molekularem Wärmetransport. Dieser Energietransport lässt sich nach dem Knudsenmodell durch Stöße zwischen zwei parallelen Oberflächen mit unterschiedlichen Temperaturen T_1 und T_2 im Abstand d beschreiben [Knu1911]. Eine genaue Betrachtung mit Berücksichtigung der Geschwindigkeitsverteilung und eines unvollständigen Energieaustausches der Moleküle beim Stoß mit der Wand ergibt für die molekulare Wärmeleitfähigkeit [Kag1969]

$$\lambda_{\text{Gas,molekular}} = \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \cdot \frac{\alpha_k}{2 - \alpha_k} \cdot \frac{R^{1/2}}{(\pi \cdot M_0 \cdot T)^{1/2}} \cdot p_{\text{Gas}} \cdot d, \quad (2-6)$$

mit α_k = Akkommodationskoeffizient (beschreibt unvollständigen Energieaustausch mit der Wand), R = allgemeine Gaskonstante und p_{Gas} = Gasdruck in den Poren. Im Unterschied zur Wärmeleitfähigkeit des freien Gases hängt die Wärmeleitfähigkeit linear vom Gasdruck ab. Zusätzlich ist die Wärmeleitfähigkeit abhängig vom Abstand d und ist somit eine Pseudowärmeleitfähigkeit.

Im Übergangsbereich $Kn \approx 1$ müssen Wand-Molekül- und Molekül-Molekülstöße berücksichtigt werden. In direkter Wandnähe ist der Temperaturgradient größer als im Gas (Smoluchowski-Effekt [Smo1898]). Aus der Abschätzung dieses „Temperatursprungs“ kann im Übergangsbereich folgende Gleichung für die Wärmeleitfähigkeit abgeleitet werden [Kag1969], [Cap2001]:

$$\lambda_{\text{Gas}}(p_{\text{Gas}}) = \frac{\lambda_{\text{Gas, frei}}}{1 + 2 \cdot \beta \cdot l_m / d} = \frac{\lambda_{\text{Gas, frei}}}{1 + 2 \cdot \beta \cdot Kn} = \frac{\lambda_{\text{Gas, frei}}}{1 + p_{1/2, \text{gas}} / p_{\text{gas}}}. \quad (2-7)$$

β = ist ein gasartabhängiger Faktor und $p_{1/2, \text{gas}}$ ist der Halbwertsdruck, bei dem die Gaswärmeleitfähigkeit in den Poren halb so groß ist wie die des freien Gases. Für die mittlere freie Weglänge l_m gilt die aus der kinetischen Gastheorie abgeleitete Beziehung

$$l_m = \frac{k_B \cdot T}{\sqrt{2} \cdot p_{\text{Gas}} \sigma_0}. \quad (2-8)$$

Setzt man diese Beziehung in Gleichung (2-7) ergibt sich $p_{1/2, \text{gas}}$ zu

$$p_{1/2, \text{gas}} = \beta \cdot \frac{k_B \cdot T}{\sqrt{2} \cdot \sigma_0 \cdot d}. \quad (2-9)$$

β lässt sich aus dem Grenzfall $Kn \gg 1$ ableiten, da dann $\lambda_{\text{gas}}(p_{\text{gas}})$ nach Gleichung (2-7) in λ_{mol} nach Gleichung (2-6) übergehen muss.

$$\beta = \frac{5 \cdot \pi}{32} \cdot \frac{2 - \alpha_k}{\alpha_k} \cdot \frac{9 \cdot \gamma - 5}{\gamma + 1}. \quad (2-10)$$

Um die Gaswärmeleitfähigkeit theoretisch berechnen zu können, müssen nach Gleichung (2-7) die Parameter β , $\lambda_{\text{Gas, frei}}$, l_m und d bekannt sein. $\lambda_{\text{Gas, frei}}$ und l_m sind nur von der Gasart abhängig und lassen sich aus der kinetischen Gastheorie ableiten. Für die Gase Stickstoff und Wasserdampf sind in Tabelle 2-1 Werte von $\lambda_{\text{Gas, frei}}$ und l_m bei $T = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ und $p = 1 \text{ bar}$ angegeben. Zusätzlich sind Werte für σ_0 , berechnet mit Gleichung (2-8), und die gasartspezifischen Adiabatenkoeffizienten γ eingetragen.

Tabelle 2-1: Werte für $\lambda_{\text{Gas, frei}}$ bei 20 °C [VDI1997], für l_m bei 20 °C und 1 bar [Kas1988], γ bei 20 °C [Tip1994] und σ_0 nach Gleichung (2-8) für die Gase Stickstoff und Wasserdampf.

	$\lambda_{\text{Gas, frei}}$ [10 ⁻³ W/(mK)]	l_m [nm]	σ_0 [10 ⁻¹⁹ m ²]	γ [-]
N ₂	25,6	61,8	4,6	1,4
H ₂ O	18,2	39,5	7,2	1,3

Zur Berechnung von β wird, zusätzlich zu γ , der Akkommodationskoeffizient α_k benötigt, der von Gasart und Material abhängig ist. Die hier untersuchte pyrogene Kieselsäure besteht aus amorphen SiO₂. Nach [Sax1989] gilt für Stickstoff an Glas ein Wert $\alpha \approx 0,83$ (bei 286 K und $\alpha \approx 0,79$ bei 341 K). Für polare Gase wie Wasserdampf kann $\alpha_k = 1$ angenommen werden [Sax1989]. Der Wert von 0,83 wurde mit der Hot-Wire-Methode an speziell präparierten, glatten Oberflächen (5 μm „Glasfilm“ auf Platindraht aufgedampft) ermittelt und kann als Abschätzung des Akkommodationskoeffizienten der pyrogenen Kieselsäure angesehen werden. An realen Materialien (erhöhte Rauigkeit, Störstellen, Fremdgase) wird für Stickstoff oft $\alpha_k = 1$ angenommen [VDI1997]. Im Weiteren wird der Wert $\alpha_k = 0,83$ als untere Abschätzung und der Maximalwert $\alpha_k = 1$ als oberer Schätzwert für Stickstoff betrachtet. Mit $\alpha_k = 1$ und $\gamma = 1,4$ beträgt $\beta_{\text{N}_2} = 1,6$ und bei $\alpha_k = 0,83$ gilt $\beta_{\text{N}_2} = 2,2$. Für Wasserdampf ($\alpha_k = 1$ und $\gamma = 1,3$) ergibt sich $\beta_{\text{H}_2\text{O}} = 1,4$.

Um die Gaswärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit vom Gasdruck darstellen zu können, muss noch die Größe d bekannt sein. Bei porösen Materialien entspricht d dem mittleren Porendurchmesser des Materials. Dieser Wert kann umgekehrt aus den Messungen der Gaswärmeleitfähigkeit ermittelt werden. Durch einen Fit von Gleichung (2-7) an die Messwerte $\lambda(p_{\text{gas}})$ lässt sich $p_{1/2, \text{gas}}$ aus dem Fit bestimmen (Fit nur in dem Druckbereich, in dem Kopplungseffekte vernachlässigbar sind). Mit Gleichung (2-9) kann der mittlere Porendurchmesser berechnet werden. Für VIPs aus pyrogener Kieselsäure beträgt der Halbwertsdruck von Stickstoff bei 20 °C ungefähr 600 mbar [Cap2001]. Mit $\beta_{\text{N}_2}(\alpha_k=1) = 1,6$ ergibt sich $d = 0,17 \mu\text{m}$ und bei $\beta_{\text{N}_2}(\alpha_k=0,83) = 2,2$ gilt $d = 0,23 \mu\text{m}$.

Kennt man $p_{1/2, \text{gas}}$ für eine Gassorte 1, dann lässt sich der Halbwertsdruck für eine andere Gassorte 2 folgendermaßen umrechnen:

$$p_{1/2, \text{Gas1}} = p_{1/2, \text{Gas2}} \cdot \frac{\beta_{\text{Gas1}}}{\beta_{\text{Gas2}}} \cdot \frac{\sigma_{0, \text{Gas2}}}{\sigma_{0, \text{Gas1}}} = p_{1/2, \text{Gas2}} \cdot \frac{\beta_{\text{Gas1}}}{\beta_{\text{Gas2}}} \cdot \frac{l_{m, \text{Gas1}}}{l_{m, \text{Gas2}}} \quad (2-11)$$

Aus $p_{1/2, \text{N}_2} = 600$ mbar, $\beta_{\text{N}_2} = 2,2$ und $\beta_{\text{H}_2\text{O}} = 1,4$ folgt mit den Werten für l_m aus Tabelle 2-1 für Wasserdampf ein Halbwertsdruck von ca. 240 mbar (bei $\beta_{\text{N}_2} = 1,6$ ergibt sich ein Halbwertsdruck von 340 mbar). Setzt man die Halbwertsdrücke von 600 mbar und 240 mbar in Gleichung (2-7) ein, dann lässt sich mit den freien Gaswärmeleitfähigkeiten aus Tabelle 2-1 die Gaswärmeleitfähigkeit von Stickstoff

und Wasserdampf in Abhängigkeit vom Druck berechnen. Abbildung 2-1 zeigt die aus diese Weise berechneten Wärmeleitfähigkeiten bei 20 °C. Bei Gasdrücken < 10 mbar bleibt die Gaswärmeleitfähigkeit für Wasserdampf unter $1 \cdot 10^{-3}$ W/(mK).

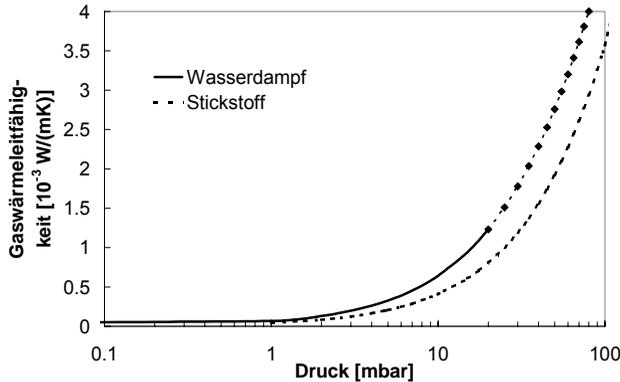


Abbildung 2-1: Gaswärmeleitfähigkeit für Luft und Wasserdampf bei 20 °C in pyrogener Kieselsäure abhängig vom Druck, berechnet aus Gleichung (2-7) mit $p_{L,1/2} = 600$ mbar, $p_{D,1/2} = 240$ mbar, $\lambda_{L, frei} = 25,6 \cdot 10^{-3}$ W/(mK) und $\lambda_{D, frei} = 18,6 \cdot 10^{-3}$ W/(mK). Oberhalb von 20 mbar ist die Wasserdampfkurve gepunktet, um anzuzeigen, dass für höhere Drücke bei 20 °C Kondensation eintritt.

Wenn Luft und Wasserdampf gleichzeitig im VIP vorhanden sind, handelt es sich um ein Gasgemisch, dessen Gaswärmeleitfähigkeiten, sich gegenseitig beeinflussen können [Fri1989]. Solange bei beiden Gasen Knudsen'sche Molekularbewegung vorherrscht, d.h. es finden vorwiegend Molekül-Wand-Stöße statt, können die Gase als unabhängig angesehen werden und die einzelnen Gaswärmeleitfähigkeiten können zur Gesamtwärmeleitfähigkeit addiert werden. Indirekt kann adsorbierter Wasserdampf die Gaswärmeleitfähigkeit von Stickstoff beeinflussen, wenn sich der Akkommodationskoeffizient von Stickstoff dadurch ändert.

2.1.3. Strahlungswärmeleitung in Vakuumisolationspaneelen

In dispersen Medien kann Wärmestrahlung von den Partikeln gestreut, absorbiert und reemittiert werden. Wenn die mittlere freie Weglänge l_m der Photonen aufgrund der Streu- und Absorptionsprozesse deutlich kleiner ist als die Dicke der Probe D , d.h. die optische Dicke $\tau_0 = D/l_m \gg 1$, dann kann der Strahlungstransport als Diffusionsprozess beschrieben werden. Für graue Medien (l_m unabhängig von der Wellenlänge und mit $u = 4 \cdot n^3 \cdot \sigma \cdot T^4 / c$), lässt sich aus Gleichung (2-3) eine Strahlungswärmeleitfähigkeit λ_{Str} ableiten. Für die Geschwindigkeit in Gleichung (2-3) gilt $v_m = c/n$ mit $c =$ Lichtgeschwindigkeit und $n =$ Brechungsindex des Mediums [Fri1984].

$$\lambda_{Str} = \frac{16}{3} \cdot n^2 \cdot l_m \cdot \sigma \cdot T^3 = \frac{16}{3} \cdot n^2 \cdot \sigma \cdot \frac{T^3}{E}, \quad (2-12)$$

wobei σ = Stefan-Boltzmann-Konstante, $v_m = c/n$ die Lichtgeschwindigkeit im Medium mit Brechungsindex n und $E = 1/l_m$ der Extinktionskoeffizient ist. Der Extinktionskoeffizient E ist in der Regel proportional zur Dichte ρ des Materials. Somit ist die spezifische Extinktion $e = E/\rho$ eine charakteristische Materialgröße.

Um die Strahlungswärmeleitfähigkeit zu bestimmen, empfiehlt es sich, das Material zu evakuieren und die Wärmeleitfähigkeit bei verschiedenen Temperaturen zu messen. Für die Wärmeleitfähigkeit evakuierter, optisch dicker Materialien gilt ($\lambda_{\text{Gas}} \approx 0$):

$$\lambda = \lambda_{\text{FK}}(T) + \frac{16}{3} \cdot n^2 \cdot \sigma \cdot \frac{T^3}{E(T)}. \quad (2-13)$$

Die Strahlungswärmeleitfähigkeit lässt sich einfach abschätzen, wenn man annimmt, dass die Festkörperwärmeleitfähigkeit und die Extinktion näherungsweise temperaturunabhängig sind. Trägt man, wie in Abbildung 2-2 gezeigt, die gemessene Wärmeleitfähigkeit über T^3 auf und extrapoliert die Messwerte linear, dann ergibt sich aus dem Ordinatenschnittpunkt bei 0 K die Festkörperwärmeleitfähigkeit¹. Aus der Differenz zwischen dieser Festkörperwärmeleitfähigkeit und der gemessenen Wärmeleitfähigkeit erhält man so die Strahlungswärmeleitfähigkeit. Bei der hier untersuchten Probe aus pyrogener Kieselsäure ($\rho = 170 \text{ kg/m}^3$) ergibt sich aus dieser Abschätzung bei 20 °C eine Strahlungswärmeleitfähigkeit von $1,0 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ und eine Festkörperwärmeleitfähigkeit von $3,4 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$. Aus der Steigung der Fit-Geraden lässt sich der Faktor $E/n^2 \approx 7400 \text{ 1/m}$ ableiten, d.h. die mittlere freie Weglänge liegt bei etwa 100 μm ; bei einer Dicke von 2 cm ist das Kernmaterial eindeutig optisch dick.

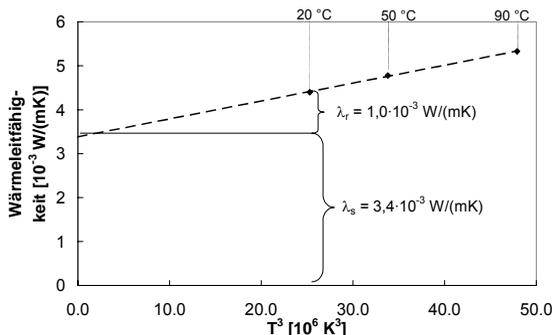


Abbildung 2-2: Wärmeleitfähigkeit einer evakuierten Platte aus pyrogener Kieselsäure (belastet mit einem Druck von 1 bar) in Abhängigkeit von der Temperatur, aufgetragen über T^3 [Har2004].

¹ Die Annahme einer annähernd temperaturunabhängigen Festkörperwärmeleitfähigkeit gilt nicht bei tiefen Temperaturen. Die nach der obigen Methode ermittelte Festkörperwärmeleitfähigkeit entspricht der mittleren Festkörperwärmeleitfähigkeit im dem Temperaturbereich, in dem sie gemessen wurde.

2.1.4. Festkörperwärmeleitung in Vakuumisulationspaneelen

Der Wärmetransport in nichtporösen, homogenen und nichtmetallischen Festkörpern lässt sich nach Debye durch Wechselwirkung von Gitterschwingungen (Phononen) beschreiben. Wenn die mittlere freie Weglänge der Phononen l_m deutlich kleiner ist als die Abmessung des Festkörpers, dann lässt sich die Wärmeleitfähigkeit λ_0 des massiven Materials gemäß dem Diffusionsmodell angeben zu [Kit1973]

$$\lambda_0 = \frac{1}{3} \cdot v_m \cdot l_m \cdot \rho_0 \cdot c_v, \quad (2-14)$$

mit ρ_0 = Dichte des Festkörpers, c_v = spez. Wärmekapazität ($du/dT = \rho_0 \cdot c_v$) und v_m = mittlere Geschwindigkeit der Phononen ($v_m \approx$ Schallgeschwindigkeit).

In amorphen Materialien wird die freie Weglänge der lokalisierten Anregungen durch Inhomogenitäten vermindert. Sie beträgt für SiO_2 -Gläser bei Raumtemperatur ungefähr 1 nm. Die Partikel der hier untersuchten pyrogenen Kieselsäure (Durchmesser der Primärpartikel 10 - 30 nm, Partikel weisen keine Mikroporosität auf [Wac2004]) können als Festkörper mit einer Wärmeleitfähigkeit λ_0 angenommen werden.

In porösen Materialien reduziert sich die Festkörperwärmeleitfähigkeit λ_{FK} mit zunehmender Porosität und kann bei Dämmstoffen mit hoher Porosität um mehrere Größenordnungen niedriger sein als λ_0 . In erster Näherung kann davon ausgegangen werden, dass die Wärmeleitfähigkeit umgekehrt proportional zur Porosität bzw. proportional zur Dichte ist. Allerdings wird der Wärmetransport zusätzlich durch die Festkörperstruktur des jeweiligen Materials (Pulver, Fasern, Schäume, poröser Monolith, ...) durch Art und Größe der beteiligten Partikel beeinflusst. Dabei reduzieren insbesondere Kontaktwiderstände zwischen den Partikeln die Wärmeleitfähigkeit bei gegebener Dichte. „Tote Arme“ tragen zwar zur Masse des Dämmstoffes bei, nicht aber zur Wärmeleitfähigkeit. Verschiedene Modelle (Zellenmodelle z.B. [Kag1969], Perkulationsmodelle z.B. [Sta1985], Phononendiffusionsmodell z.B. [Nil1989],...) wurden entwickelt, um den Wärmetransport über das Festkörpergerüst zu beschreiben. Um die Festkörperleitung in Pulvern zu beschreiben sind analytische Zellenmodellen, bei denen der Festkörper aus Einheitszellen mit geometrischen Körpern und idealisierten Kontaktpunkten zwischen den Körpern zusammengesetzt wird, nur bedingt geeignet [Ret1996]. Die Anwendung von Phononendiffusionsmodellen auf Pulver ergibt eine gute Übereinstimmung mit Messungen [Lu1991]. Perkulationsmodelle beschreiben die physikalischen Eigenschaften durch Gitterpunkte, denen eine Besetzungswahrscheinlichkeit w zugeordnet wird. Ab einer kritischen Besetzungswahrscheinlichkeit w_c bildet sich ein das ganze Volumen durchsetzender Cluster aus Gitterpunkten, wobei die physikalischen Eigenschaften des Clusters wie die Wärmeleitfähigkeit mit Skalierungsgesetzen der Form $\lambda_{FK} \sim (w-w_c)^\beta$ beschrieben werden ($\lambda_{FK} = 0$ für $w < w_c$). Mit der Perkulationstheorie konnte die Festkörperwärmeleitung in Aerogelen gut beschrieben werden [Lu1991], [Hei1993]. Nimmt man für die Besetzungswahrscheinlichkeit $w = \rho_{FK}/\rho_0$, so ergibt sich ($w_c \approx 0$ bei Aerogelen) folgendes Skalie-

rungsverhalten (ρ_{FK} = Rohdichte des porösen Materials, ρ_0 = Dichte des massiven Materials):

$$\lambda_{FK} \sim \left(\frac{\rho_{FK}}{\rho_0} \right)^\beta. \quad (2-15)$$

An SiO_2 -Aerogelen wurde von [Lu1991] $\beta = 1,5$ gemessen, aus theoretischen Überlegungen [Hei1993] ergibt sich $\beta \approx 2$. An Schäumen wurde ein Skalierungsverhalten mit $\beta \approx 1$ ermittelt [Cap1997]. An gepressten Pulvern aus pyrogener Kieselsäure wurde $\beta = 1,1 - 1,3$ [Lu1991] gemessen mit $w_c \approx 0,13$.

Die hier untersuchten Platten aus pyrogener Kieselsäure weisen Rohdichten um 170 kg/m^3 auf. Die Festkörperwärmeleitfähigkeit wird von der Vorgeschichte beeinflusst. Bei erstmaliger Belastung des Pulvers ändert sich die Dichte und die Wärmeleitfähigkeit irreversibel durch die Verpressung, bei späteren Belastungen sind die Änderungen annähernd reversibel, wobei eine Hysterese bei Be- und Entlastung auftritt [Fri1989]. Abbildung 2-3 zeigt die gemessene Wärmeleitfähigkeit industriell gefertigter VIPs mit unterschiedlicher Rohdichte aus pyrogener Kieselsäure. Die VIPs waren ausreichend evakuiert ($p < 1 \text{ mbar}$ und $p \ll p_{1/2}$), so dass die Gaswärmeleitung weitestgehend unterdrückt war ($\lambda_{\text{Gas}} \approx 0$). Von dieser Wärmeleitfähigkeit im evakuierten Zustand λ_{evac} wurde die Strahlungswärmeleitfähigkeit λ_{Str} (s. Kapitel 2.1.3 mit $E = e/\rho$ und $\lambda_r \sim 1/\rho$) abgezogen². Die Differenz entspricht in guter Näherung der Festkörperwärmeleitung λ_{FK} .

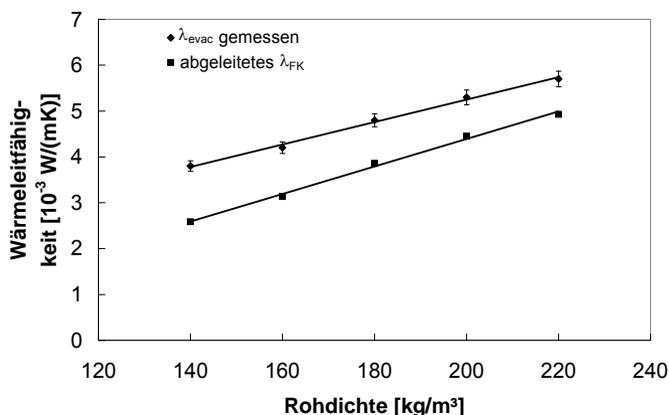


Abbildung 2-3: Wärmeleitfähigkeit λ_{evac} ($p \ll p_{1/2}$) in Abhängigkeit von der Rohdichte von VIPs aus pyrogener Kieselsäure, die industriell mit unterschiedlicher Rohdichte gefertigt wurden, und zugehörige Festkörperwärmeleitfähigkeit λ_{FK} abgeschätzt aus $\lambda_{FK} = \lambda_{\text{evac}} - \lambda_{\text{Str}}$.

² Die Strahlungswärmeleitfähigkeit wurde an einer Probe gemessen und wird auf unterschiedliche Rohdichten umgerechnet, während die Gesamtwärmeleitfähigkeit an verschiedenen Proben unterschiedlicher Rohdichte bei gleichem Belastungsdruck von 1 atm gemessen wurde.

Im betrachteten Rohdichtebereich lässt sich sowohl die gemessene Wärmeleitfähigkeit im evakuierten Zustand λ_{evac} als auch die Festkörperwärmeleitfähigkeit $\lambda_{\text{FK}} \approx \lambda_{\text{evac}} - \lambda_{\text{Str}}$ ($\lambda_{\text{Str}} \sim 1/\rho$, da $E = e/\rho$) durch eine lineare Abhängigkeit annähern. Die Steigungen der in Abbildung 2-3 eingezeichneten Geraden betragen $\Delta\lambda_{\text{FK}}/\Delta\rho = 3,0 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot 100 \text{ kg}/\text{m}^3)$ und $\Delta\lambda_{\text{evac}}/\Delta\rho = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot 100 \text{ kg}/\text{m}^3)$.

2.2. Wärmetransport in feuchten Materialien

2.2.1. Vorüberlegungen

Bei der bisherigen Betrachtung der Wärmeleitfähigkeit von Vakuumisulationspaneelen ließen sich die einzelnen Wärmetransportvorgänge durch Stöße von Teilchen oder Quasiteilchen beschreiben. Dabei konnten aus theoretischen Überlegungen Beziehungen für die einzelnen Wärmeleitfähigkeiten abgeleitet werden. Die Beschreibung der Wärmetransportmechanismen, die auftreten können, wenn Wasser im VIP vorhanden ist, erweist sich als wesentlich schwieriger. Zum einen sind verschiedene Transportvorgängen möglich und zum anderen hängt es stark vom Kernmaterial ab, welche Transportvorgänge tatsächlich auftreten. Betrachtet man z.B. hydrophobe, grobporige Kernmaterialien wie Schäume oder Glasfasern, deren Wärmeleitfähigkeit bei Gasdrücken über 0,1 mbar bereits nennenswert ansteigt (s. Abbildung 1-1), dann wird eindringender Wasserdampf, der nicht adsorbiert wird, unmittelbar zu einem Anstieg der Gaswärmeleitfähigkeit führen. Diese Kernmaterialien werden deswegen bevorzugt in VIPs mit äußerst dichten Umhüllungen, z.B. Edelstahl, verwendet. Falls diese Kernmaterialien in VIPs mit Folienumhüllungen eingesetzt werden (Folienumhüllungen haben insbesondere bei Wasserdampf relativ hohe Durchlässigkeiten), dann wird in der Regel ein Trocknungsmittel eingesetzt, das den eindringenden Wasserdampf im VIP chemisch bindet. Im Unterschied zu den Schäumen und Glasfasern können nanostrukturierte Kieselsäuren aufgrund ihrer Hygroskopizität und ihrer großen inneren Oberfläche Wasserdampf in hohem Maße adsorbieren. Sie wirken quasi als physikalisches Trocknungsmittel. Welche Wassermengen und auf welche Weise das Wasser an den Festkörper gebunden wird, beeinflusst die Wärmeleitfähigkeit feuchter Materialien.

Bisher wurden für diese Kernmaterialien keine systematischen Untersuchungen oder theoretische Beschreibungen des feuchtebedingten Wärmetransports durchgeführt. Aus Untersuchungen an porösen, nicht evakuierten Materialien ist bekannt, dass Feuchte zu einer signifikanten Wärmeleitfähigkeitszunahme führen kann. Vor allem für Baustoffe wurden hier umfangreiche Untersuchungen durchgeführt. Aus diesem Grund soll auch für die hier verwendete pyrogene Kieselsäure der Einfluss der Feuchte auf die Wärmeleitfähigkeit messtechnisch ermittelt werden.

2.2.2. Sorptionsisotherme

Die Sorptionsisotherme für Wasserdampf gibt die Menge an Wasser an, die ein Material bei gegebenem relativen Dampfdruck aufnehmen kann. Ein Verfahren zur

Messung der Sorptionsisotherme ist in DIN 52620 beschrieben. Zur Messung wird eine vorher getrocknete Probe bei konstanter relativer Luftfeuchte und konstanter Temperatur bis zum Erreichen des Gleichgewichtszustands, der sog. Ausgleichsfeuchte, gelagert. Gleichgewicht liegt vor, wenn die Probe keine weitere Massenzunahme durch Adsorption von Wasser aufweist. Aus der adsorbierten Wassermenge m_w , die sich gravimetrisch einfach ermitteln lässt, wird der Wassergehalt bestimmt. Je nach Bezugsgröße unterscheidet man den massebezogenen Wassergehalt $X_{w,m}$ ($X_{w,m} = (\text{Masse Wasser in Probe}) / (\text{Trockenmasse der Probe})$), den volumenbezogenen Wassergehalt $X_{w,v}$ ($X_{w,v} = (\text{Volumen an Wasser in Probe}) / (\text{Volumen der Probe})$) oder die Wassergehaltskonzentration w ($w = (\text{Masse Wasser in Probe}) / (\text{Volumen der Probe})$). Zwischen diesen Größen, die meist als Funktion der relativen Luftfeuchte φ bei konstanter Temperatur angegeben werden, gelten die folgenden Beziehungen.

$$X_{w,m}(\varphi) = X_{w,v}(\varphi) \cdot \frac{\rho_w}{\rho_{tr}} = \frac{w(\varphi)}{\rho_{tr}}, \quad (2-16)$$

wobei ρ_w die Dichte von Wasser und ρ_{tr} die Rohdichte der trockenen Probe ist.

Abbildung 2-4 veranschaulicht die Sorptionsisotherme des Kernmaterials Wacker WDS der Fa. Wacker Chemie GmbH für Wasserdampf (Basismaterial: pyrogene Kieselsäure Typ T30). Die Sorptionsisotherme wurde von der Fa. Quantachrom/Odelzhausen gemessen. Dazu wurde das Material für 3 h bei 150 °C unter Vakuum getrocknet und anschließend die Sorptionsisotherme bei einer konstanten Temperatur von 23 °C für einen Adsorptions- und einen Desorptionszyklus bestimmt.

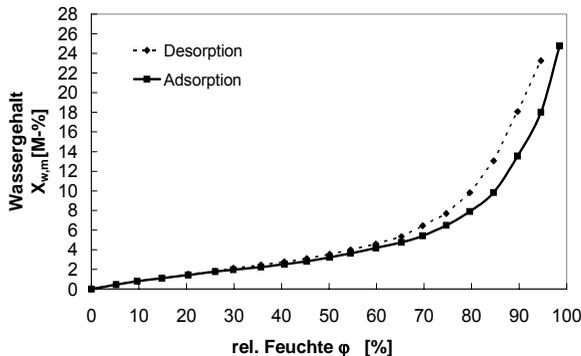


Abbildung 2-4: Sorptionsisotherme bei $T = 23 \text{ °C}$ für das VIP-Kernmaterial aus pyrogener Kieselsäure Typ Wacker HDK® T30.

Die Sorptionsisotherme verläuft bis zu etwa 50-60 % r.F. annähernd linear. Ab ca. 70 % r.F. steigt der Wassergehalt immer stärker an. Im ersten Bereich bis ca. 60 % r.F. ist Wasser sorptiv gebunden, der steilere Anstieg oberhalb 70 % r.F. kann

durch Auftreten von Kapillarkondensation erklärt werden. Für relative Feuchten bis ca. 50 % lässt sich die Sorptionsisotherme gut durch eine lineare Beziehung annähern.

$$X_{w,m}(\varphi) \approx \alpha \cdot \varphi, \quad (2-17)$$

wobei die Steigung $\alpha \approx 0,08$ M-% pro Prozent rel. Feuchte beträgt. Ein annähernd linearer Anstieg des Wassergehalts bis über 50 % r.F. deutet darauf hin, dass die pyrogene Kieselsäure nicht mikroporös ist und der Beitrag der Bindungsenergie zur Adsorptionenthalpie h_{Ad} klein ist im Vergleich zu h_v . Oberhalb von $\varphi = 50$ % r.F. zeigt sich ein Hystereeffekt. Ad- und Desorption verlaufen hier auf unterschiedlichen Austauschflächen.

Betrachtet man die Umkehrfunktion $\varphi(X_{w,m})$ der Sorptionsisotherme $X_{w,m}(\varphi)$, so kann daraus der Wasserdampfdruck p_D bei vorgegebenem Wassergehalt im Material ermittelt werden. Dieser Druck berechnet sich gemäß

$$p_D = \varphi(X_{w,m}) \cdot p_{D,Sat}(T), \quad (2-18)$$

wobei $p_{D,sat}(T)$ der Satttdampfdruck von Wasser ist.

2.2.3. Einfluss des Sorptionsverhaltens auf den Wärmetransport

Neben dem Feuchtegehalt beeinflusst das Sorptionsverhalten der pyrogenen Kieselsäure die Wärmeleitfähigkeit. Im Bereich monomolekularer Beladung wird sich Wasser an die große innere Oberfläche anlagern. Mit zunehmender Feuchte können sich durchgehende Wasserfilme aufbauen und schließlich, beginnend in feinen Kapillaren, Wasserbrücken bilden. Ein Effekt, der möglicherweise schon bei kleinen Feuchten zu einem nennenswerten Anstieg der Wärmeleitfähigkeit führen kann, ist die Bildung von Wasserzwickeln an Kontaktstellen zwischen einzelnen Partikeln, da diese Kontaktstellen erhöhte thermische Widerstände darstellen. Wasserbrücken können „tote Wege“ thermisch aktivieren oder Wege für den Wärmetransport verkürzen. Die Bildung von Wasserfilmen und Wasserbrücken resultiert in einem verstärkten Anstieg der Wärmeleitfähigkeit mit zunehmendem Wassergehalt (Bsp: Aerogel [Kag1969]). In Abbildung 2-5 sind die beschriebenen Einflüsse der Feuchte auf den Wärmetransport in VIPs bildlich dargestellt.

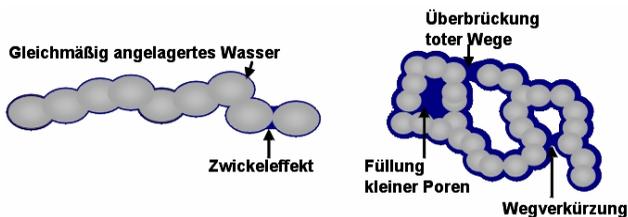


Abbildung 2-5: Schematische Darstellung der Wirkungsweise von am Festkörper gebundenem Wasser auf den Wärmetransport in porösen Materialien.

Die Menge an Wasser im VIP bestimmt wesentlich den Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit. Wenn VIPs bei der Herstellung getrocknet werden, sollte der Wassergehalt verschwindend gering sein. Im Lauf der Zeit (in Jahren bzw. Jahrzehnten) wird der Wassergehalt ansteigen und einen Grenzwert erreichen, der abhängig ist von dem außen am VIP vorhandenen Wasserdampfpartialdruck. Ob und wie schnell diese Ausgleichsfeuchte erreicht wird, hängt vor allem von der Dampfdichtigkeit der VIP-Umhüllung ab. Welche relativen Luftfeuchten am VIP anliegen, hängt von der jeweiligen Anwendung ab. Im Baubereich variieren, wie eigenen Messungen gezeigt haben [Sch2003], die Jahresmittelwerte je nach Anwendung (Innendämmung, WDVS, Brüstungselement) zwischen 45 und 85 % r.F.. Gemäß der Adsorptionsisotherme entspricht dies einem maximalen Wassergehalt $X_{w,m}$ von ca. 3 bis 10 M-%.

2.2.4. Wärmetransport in feuchten, nichtevakuierten Materialien

Vor der Messung der Wärmeleitfähigkeit von feuchten, nichtevakuierten Materialien werden die Proben so präpariert, dass ein bestimmter, möglichst gleichmäßig verteilter Wassergehalt in der Probe vorliegt. Für die Messungen werden die Proben in der Regel bei konstanter Temperatur und relativer Feuchte bis zum Erreichen des Gleichgewichtszustands gelagert.

Für die Messung der Wärmeleitfähigkeit von feuchten Materialien wurden spezielle Messverfahren entwickelt. Diese sind so konzipiert, dass Feuchteumlagerungsprozesse während der Messung nicht zu einer deutlichen Umlagerung und ungleichmäßigen Wassergehaltsverteilung in der Probe führen, d.h. die durch Diffusion im Temperaturgradient während der Messung transportierte Dampfmenge muss klein sein im Vergleich zur Wassermenge im Material. Die Messung erfolgt dann bei gleichmäßig verteiltem und annähernd zeitlich konstantem, quasi-stationärem Wassergehalt. Um dies zu erreichen, werden z.B. Messungen mit der Plattenapparatur unter vermindertem Temperaturgefälle (0,2 bis 0,4 K/cm) durchgeführt [Cam1995]. Auch Kurzzeitverfahren, z.B. nach Krischer-Esdorn, die eine Messung von feuchten Proben ermöglichen, wurden entwickelt.

Um einen Kennwert für den Feuchteinfluss zu erhalten, ist es üblich, die feuchteabhängige Wärmeleitfähigkeit näherungsweise durch einen linearen Ansatz zu beschreiben. Folgende Darstellungen sind üblich [Cam1995]:

$$\lambda \approx \lambda_{tr} + a_v \cdot X_{w,v} \approx \lambda_{tr} \cdot (1 + b_m \cdot X_{w,m}) \approx \lambda_{tr} \cdot (1 + b_v \cdot X_{w,v}) . \quad (2-19)$$

Die Konstante a_v gibt die Zunahme der Wärmeleitfähigkeit je Prozent volumenbezogenem Wassergehalt an. Die Konstanten b_m und b_v geben an, wie groß die relative Zunahme der Wärmeleitfähigkeit je Prozent masse- oder volumenbezogenem Wassergehalt $X_{w,m}$ bzw. $X_{w,v}$ ist. Mit Kenntnis der Rohdichte und der Trockenwärmeleitfähigkeit lassen sich die Konstanten, die hier als Feuchtezuschlagskoeffizienten bezeichnet werden, ineinander umrechnen. In Tabelle 2-2 sind für einige Baustoffe typische Werte für a_v angegeben [Kün1994].

Tabelle 2-2: Feuchtezuschlagskoeffizienten a_v für verschiedene Materialien.

Material	Faktor a_v [$10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{Vol}\cdot\text{\%)}]$]
Porenbeton $\rho = 400\text{-}800 \text{ kg/m}^3$	9,0 - 9,5
Leichtbeton $\rho = 300\text{-}900 \text{ kg/m}^3$	7,0 - 9,3
Holz $\rho = 400\text{-}700 \text{ kg/m}^3$	3,0 - 3,2
Polystyrol (XPS) $\rho = 30 \text{ kg/m}^3$	1,0
Polyurethan $\rho = 50 \text{ kg/m}^3$	2,4

Je nach Material liegt der Faktor a_v zwischen $(1 - 10) \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{Vol}\cdot\text{\%)}.$

Die in Tabelle 2-2 angegebenen Zuschlagswerte beziehen sich auf den Anstieg der Wärmeleitfähigkeit, der durch das an das Material gebundene Wasser X_w hervorgerufen wird. Diese Zuschlagswerte lassen sich nicht direkt aus Messungen der Wärmeleitfähigkeit nach dem oben beschriebenen Verfahren ableiten. Wenn, wie oben angegeben, die Wärmeleitfähigkeit unter quasistationären Bedingungen gemessen wird, dann stellt sich ein quasistationärer Diffusionsstrom bzw. ein quasistationärer Latentwärmestrom ein, dem nach [Kri1978], [Vri1987] eine äquivalente Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ zugeordnet werden kann. $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ ist keine echte Wärmeleitfähigkeit, sondern eine Hilfsgröße, um den Einfluss des Latentwärmetransports zu charakterisieren. Die feuchteabhängige Wärmeleitfähigkeit lässt sich angeben als eine vom gebundenen Wasser abhängige Wärmeleitfähigkeit $\lambda_w(X_w)$ und als eine diffusionsbedingte Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ [Bou1999].

$$\lambda_{\text{Messung}} = \lambda_w(X_w) + \lambda_{D,\text{Diffusion}} \quad (2-20)$$

Somit muss, wenn man den Feuchtezuschlagskoeffizienten durch das gebundene Wasser ermitteln will, die Differenz $\lambda_{\text{Messung}} - \lambda_{D,\text{Diffusion}}$ in Gleichung (2-19) eingesetzt werden. Aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit lässt sich $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ durch Messung bei unterschiedlichen Temperaturen ermitteln [Bou1999]. Bei niedrigen Temperaturen ($< 20 \text{ }^\circ\text{C}$) und Materialien mit hohem Dampfdiffusionswiderstand (geschlossenporige Materialien, z.B. Polystyrol, oder offenporige Materialien mit geringer Porosität) kann der Einfluss von $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ meist vernachlässigt werden. Bei diffusionsoffenen Materialien, wie z.B. Mineralwolle, muss der Einfluss von $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ berücksichtigt werden. Im Kapitel 2.3.3 wird aus einer instationären Transportgleichung eine Formel für $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ abgeleitet und die Größenordnung von $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ abgeschätzt.

2.2.5. Wärmetransport in feuchten VIPs aus pyrogener Kieselsäure

In feuchten Vakuuminulationspaneelen können unterschiedliche Transportmechanismen zu einer Erhöhung des Wärmeflusses im VIP im Vergleich zu trockenen VIPs beitragen. Dies kann, als typische Eigenschaft von VIPs, eine Erhöhung der Gaswärmeleitfähigkeit durch Wasserdampfdruck $\lambda_D(p_D)$ in den Poren sein. Weiterhin ist ein Anstieg der Wärmeleitfähigkeit durch an das Festkörpergerüst ge-

bundenen Wasser X_w und ein Wärmetransport durch Dampfdiffusion zu erwarten. Bezüglich der Feuchteumlagerungsprozesse ist allerdings ein wesentlicher Unterschied im Vergleich zum nichtevakuierten diffusionsoffenen Materialien vorhanden. Während in diffusionsoffenen Materialien von außen Feuchte nachgeliefert wird und ein permanenter Partialdruckgradient vorhanden sein kann, wird sich, wenn ein Temperaturgradient am VIP anliegt, die Feuchte so lange umlagern, bis im stationären Zustand die Diffusion zum Erliegen kommt. Die Diffusion muss nicht zwangsläufig aufhören. Durch die Feuchteumlagerung wird sich im VIP ein Wassergehaltsgradient einstellen, der dem Dampfdruck entgegengesetzt gerichtet ist. Dieser Gradient kann einen Flüssigkeitsrücktransport zur Folge haben. Stellt sich ein dem Diffusionsstrom entgegengesetzt gerichteter, gleichgroßer Flüssigkeitsstrom ein, dann ergibt sich ein Heat-Pipe-Effekt mit stationärem Latentwärmetransport.

Das am Festkörper gebundene Wasser wird zu einer Erhöhung der Festkörperwärmeleitfähigkeit und der in den Poren vorhandene Wasserdampf zur Gaswärmeleitung beitragen. Falls neben Wasserdampf auch trockene Luftgase vorhanden sind, so können, solange $p_L \ll p_{L,1/2}$ und $p_D \ll p_{D,1/2}$, die Gase in ihrer Wirkung auf die Wärmeleitfähigkeit als unabhängig angesehen werden (auch Koppelungseffekte sind bei diesen Drücken vernachlässigbar), ansonsten muss das System als Gasmischung behandelt werden. Nach dem einfachen Additionsmodell, bei dem die einzelnen Transportprozesse als unabhängig voneinander angenommen werden, lässt sich die Wärmeleitfähigkeit eines feuchten VIPs durch die Addition der einzelnen Wärmeleitfähigkeiten folgendermaßen abschätzen (für $p_D \ll p_{D,1/2}$ und $p_L \ll p_{L,1/2}$).

$$\lambda \approx \lambda_{\text{evac}} + \lambda_w(X_w) + \lambda_D(p_D) + \lambda_L(p_L), \quad (2-21)$$

mit λ_{evac} als Wärmeleitfähigkeit im evakuierten Zustand ($p_D = p_L = 0$). In dem Term $\lambda_w(X_w)$ ist ein Festkörperwärmetransport durch angelagertes Wasser zusammengefasst, während λ_D und λ_L die Gaswärmeleitfähigkeit von Dampf bzw. Luft angeben.

Betrachtet man VIPs mit ungleichmäßig verteiltem Wassergehalt, so ist die Wärmeleitfähigkeit ortsabhängig. Definiert man eine mittlere Wärmeleitfähigkeit λ_{mittel} für eine Probe der Dicke D_{Probe} , so ergibt sich aus Integration von Gleichung (2-1) folgender Zusammenhang zwischen λ_{mittel} und $\lambda(x)$.

$$\lambda_{\text{mittel}} := \frac{q \cdot D_{\text{Probe}}}{T_1 - T_2} = \frac{1}{T_1 - T_2} \cdot \int_0^D \lambda(X_w(x), T(x)) \cdot \left(\frac{dT}{dx} \right) \cdot dx. \quad (2-22)$$

λ_{mittel} ist dabei die Wärmeleitfähigkeit, die bei stationären Bedingungen (nach Ende der Feuchteumlagerungsprozesse) gemessen wird.

2.3. Instationärer Wärme- und Feuchtetransport

2.3.1. Berechnungsmodell

Der instationäre Transport von Wärme und Feuchte in porösen Materialien lässt sich durch zwei gekoppelte, nichtlineare Partialgleichungen beschreiben. Grundlegende Arbeiten wurden von Phillip und de Vries [Phi1957] für den Wärme- und Flüssigkeitstransport im Erdreich durchgeführt. Kießl hat diese Theorie auf die Belange von Baustoffen übertragen [Kie1983]. In neueren Arbeiten wurden diese Theorien erweitert und verschiedene Modelle mit numerischen Berechnungsverfahren entwickelt. Diese Modelle unterscheiden sich vor allem darin, welche unabhängigen Größen als treibendes Potenzial angenommen werden. Die folgenden Gleichungen beschreiben den gekoppelten Wärme- und Feuchtetransport nach einem Modell von Künzel [Kün1994].

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{du}{d\vartheta} \cdot \frac{\partial \vartheta}{\partial t} = \nabla(\lambda \cdot \nabla \vartheta) + h_{Ad} \cdot \nabla(\delta_D \cdot \nabla(\varphi \cdot p_{D,sat})), \quad (2-23)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \frac{dw}{d\varphi} \cdot \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \nabla(K_\varphi \cdot \nabla \varphi) + \nabla(\delta_D \cdot \nabla(\varphi \cdot p_{D,sat})). \quad (2-24)$$

- u:** Energiedichte in J/m³,
w: Wassergehalt in kg/m³,
ϑ: Temperatur in °C,
φ: relative Luftfeuchte in den Poren,
p_{D,sat}: Sattdampfdruck von Wasserdampf in Pa,
φ·p_{D,sat}: φ·p_{D,sat} ist identisch mit dem Dampfdruck p_D in den Poren,
h_{Ad}: Adsorptionsenthalpie in J/kg,
λ: Gesamtwärmeleitfähigkeit im feuchten Material in W/(m·K),
δ_D: Wasserdampf-Diffusionsleitkoeffizient des Materials in kg/(m·s·Pa),
K_φ: bezeichnet als Feuchteleitkoeffizient in kg/(m·s) und
dw/dφ: Steigung der Sorptionsisotherme w(φ).

Gleichung (2-23) ist der Energieerhaltungssatz. Die Energiedichte ändert sich durch Wärmeleitung ($\nabla(\lambda \cdot \nabla \vartheta)$) und durch Dampfdiffusion, verbunden mit Transport von Latentwärme ($h_{Ad} \cdot \nabla(\delta_D \cdot \nabla p_D)$). Für die Energiedichte u oberhalb von 0 °C gilt näherungsweise [Kün1994]:

$$u = \rho_{FK} \cdot c_{FK,v} \cdot \vartheta + w \cdot c_{w,v} \cdot \vartheta, \quad (2-25)$$

wobei ρ_{FK} die Rohdichte des porösen Materials, $c_{FK,v}$ die spezifische Wärmekapazität der trockenen Probe und $c_{w,v}$ die spezifische Wärmekapazität von Wasser ist.

Die Gleichung (2-24) entspricht der Massenerhaltung. Der Wassergehalt, angegeben als Wassergehaltskonzentration w in kg/m³, ändert sich durch Dampfdiffusion ($\nabla(\delta_D \cdot \nabla p_D)$) und durch Flüssigtransport ($\nabla(K_\varphi \cdot \nabla \varphi)$). Künzel verwendet die relative

Feuchte als treibendes Potenzial für den Flüssigtransport. Anstelle der relativen Feuchte wird in anderen Modellen oft die Wassergehaltskonzentration als treibendes Potenzial angenommen [Lut1994]. Der Flüssigtransport schreibt sich dann als

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \nabla(\chi(w) \cdot \nabla w). \quad (2-26)$$

$\chi(w)$ wird hier als Wasserleitkoeffizient bezeichnet. Aus $\nabla w = dw/d\varphi \cdot \nabla \varphi$ ergibt sich die Beziehung $K_\varphi(w) = \chi(w) \cdot dw/d\varphi$ zwischen dem Wasserleitkoeffizient $\chi(w)$ und dem Feuchteleitkoeffizient $K_\varphi(w)$. Mit $w = w(\varphi)$ lässt sich der Wasserleitkoeffizient und der Feuchteleitkoeffizient als Funktion der relativen Feuchte darstellen. Solange das Wasser durch Adsorption bei kleinen relativen Luftfeuchten fest an die Oberfläche gebunden ist, gilt $\chi(w) \approx 0$. Mit steigender Luftfeuchte wird die Flüssigkeitsschicht beweglich und Oberflächendiffusion wird möglich (beginnt bei einigen Stoffen bereits ab 30 - 40 % r.F. [Kün1994], [Kas1988]). Bei hohen relativen Feuchten und mit Beginn der Kapillarkondensation erhöht sich der Flüssigtransport durch kapillare Weiterleitung. Obwohl Oberflächendiffusion und Kapillartransport unterschiedliche Transportmechanismen sind, lassen sie sich durch die gleiche Transportgleichung (Gleichung (2-26)) beschreiben³. Bei der Oberflächendiffusion liegt der Wasserleitkoeffizient in der Größenordnung 10^{-9} bis 10^{-11} m²/s [Kas1988], bei Kapillartransport kann er deutlich größer werden und Werte bis zu 10^{-5} m²/s erreichen.

Zwischen dem Wasserdampfdiffusionsleitkoeffizient δ_D und dem Diffusionskoeffizienten D_D für Wasserdampf besteht folgender Zusammenhang.

$$\delta_D = \frac{D_D \cdot M_{w,mol}}{\mu \cdot (R \cdot T)}, \quad (2-27)$$

mit $M_{w,mol}$ = molare Masse von Wasser, R = allgemeine Gaskonstante und μ = Wasserdampfdiffusionswiderstandszahl; sie charakterisiert die Reduzierung des Diffusionsstromes durch das Material (Umwege, Querschnittsänderungen).

Welcher Diffusionskoeffizient für die Berechnungen angenommen werden muss, hängt davon ab, welche Art von Diffusionstransport stattfindet. In nichtevakuierten Materialien kann der Diffusionskoeffizient für freie Gasdiffusion von Wasserdampf $D_{D, frei}$ in Luft angesetzt werden⁴ [Cam1995]. Er lässt sich durch eine empirische Gleichung abschätzen.

$$D_{D, frei} = 2,306 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{p_0}{p_{ges}} \cdot \left(\frac{T}{273,15} \right)^{1,81}, \quad (2-28)$$

³ Das treibende Potenzial des Kapillartransportes ist die Saugspannung. In vielen Modellen und Untersuchungen [Kün1994] hat sich der Ansatz nach Gleichung (2-26) mit w als treibendes Potenzial des Flüssigtransports bewährt.

⁴ Eine genaue Betrachtung [Kri1978] zeigt, dass die Diffusion in den Poren durch den Stefanschen Diffusionsansatz (Diffusion zwischen Flüssigkeit an Porenwand und Dampf in Poren) zu beschreiben ist. Solange keine hohen Temperaturen (> 40 °C) betrachtet werden, ist bei nichtevakuierten Systemen der Diffusionskoeffizient der freien Gasdiffusion annähernd gleich dem Stefanschen Diffusionskoeffizienten.

mit $p_0 = 1,013 \text{ bar}$ und $p_{\text{ges}} = \text{Gesamtdruck des Dampf-Luft-Gemisches}$. Bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ beträgt $D_{D,\text{frei}} = 2,4 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$.

In evakuierten Materialien ist die Art des Gastransports abhängig vom Luftpartialdruck p_L und Wasserdampfpartialdruck p_D im Material. Für $p_L \ll p_{L,1/2}$ und $p_D \ll p_{D,1/2}$ finden überwiegend Gas-Wand-Stöße und somit Molekulartransport statt (die Gasarten beeinflussen sich nicht). Für $p_L \gg p_{L,1/2}$ finden Molekül-Molekülstöße statt, auch zwischen Luft- und Wasserdampfmolekülen, so dass hier Gasdiffusion von Wasserdampf in Luft vorliegt. Im Übergangsbereich tritt eine Kombination von Molekular- und Gasdiffusion auf. Falls $p_L = 0$ und $p_D \gg p_{D,1/2}$, so würde ein Druckunterschied eine laminare Strömung zur Folge haben.

Für den molekularen Gastransport lässt sich ein molekularer Diffusionskoeffizient⁵ für Wasserdampf $D_{D,\text{molekular}}$ aus der kinetischen Gastheorie ableiten [Kas1988].

$$D_{D,\text{molekular}} = \frac{4}{3} \cdot d \cdot \sqrt{\frac{R \cdot T}{2 \cdot \pi \cdot M_{w,\text{mol}}}}, \quad (2-29)$$

wobei d der mittlere Porendurchmesser im Material und $M_{w,\text{mol}}$ die molare Masse von Wasser ist. Analog zur Wärmeleitfähigkeit ist auch der molekulare Diffusionskoeffizient eine Pseudogröße, da er vom Abstand der Berandung abhängt. Bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ und bei einem mittleren Porendurchmesser der pyrogenen Kieselsäure von ca. $0,2 \text{ }\mu\text{m}$ beträgt $D_{D,\text{molekular}} = 3,9 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. Dieser Wert ist um den Faktor 1,6 größer als $D_{D,\text{frei}}$, so dass bei der pyrogenen Kieselsäure die Feuchteumlagerung im VIP schneller abläuft als im belüfteten Zustand (bei gleichem Dampfdruckgradienten).

2.3.2. Stationäre Betrachtung mit und ohne Heat-Pipe-Effekt

Im stationären Zustand $\partial u/\partial t = 0$ und $\partial w/\partial t = 0$ müssen zwei Fälle unterschieden werden. Falls $K_\varphi = 0$, dann folgt aus $\partial w/\partial t = 0$, dass dp_D/dx verschwindet, d.h. im stationären Zustand findet keine Knudsensche Diffusion und kein Latentwärmetransport statt. Falls $K_\varphi > 0$ bzw. $\chi(w) > 0$, dann kann, da sich durch die Feuchteumlagerung ein Flüssigkeitskonzentrationsgradient entgegengesetzt zum Druckgradient bildet, ein stationärer Heat-Pipe-Effekt ausbilden. Mit $\partial w/\partial t = 0$ kann sich ein konstanter Flüssigmassenstrom dm_w/dt einstellen, der genauso groß ist wie der Dampfmassestrom dm_D/dt , aber in die entgegengesetzte Richtung verläuft.

$$\dot{m}_w = (K_\varphi \cdot \nabla \varphi) = (\chi \cdot \nabla w) = -(\delta_D \cdot \nabla p_D) = -\dot{m}_D. \quad (2-30)$$

Dies führt zu einem stationären Latentwärmestrom, den man bei der Messung der Wärmeleitfähigkeit mitmessen würde. Der Heat-Pipe-Effekt muss nicht durch die

⁵ Neben Strömung und Diffusion ist der Molekulartransport ein eigenphysikalischer Transportmechanismus. Da der Stofftransport, wie die Strömung, im Gesamtdruckgradienten stattfindet, wird er auch als Molekularströmung bezeichnet, obwohl die transportierten Stoffmengen bei gleichem Druckgradienten in der Regel deutlich geringer sind als bei laminarer Strömung. Oft wird der Molekulartransport auch als Knudsensche Diffusion oder als molekulare Diffusion bezeichnet. Diese Bezeichnungsweise wird in dieser Arbeit verwendet.

ganze Probe hindurch verlaufen, er kann auch in Teilbereichen hoher Feuchte oder in einzelnen Poren auftreten. Abbildung 2-6 veranschaulicht den Heat-Pipe-Effekt in Teilbereichen des VIPs mit hohem Wassergehalt und Wassergehaltsgradienten und den inneren Heat-Pipe-Effekt in einer Pore, wie er durch Oberflächendiffusion in der Flüssigkeit entstehen kann.

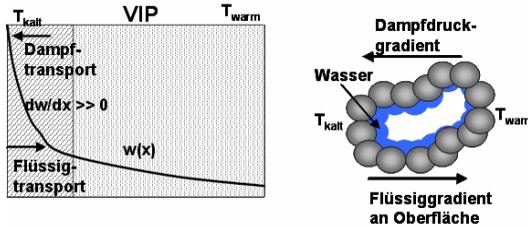


Abbildung 2-6: Schematische Darstellung des Heat-Pipe-Effekts in Teilbereichen mit hohem Wassergehalt w und $-$ gradienten (links) und Darstellung eines lokalen Heat-Pipe-Effekts in einer Pore (rechts), bei dem die Flüssigkeit durch Oberflächendiffusion entgegen der Dampfdiffusion zurücktransportiert wird.

Um abschätzen zu können, ob ein Heat-Pipe-Effekt in VIPs aus pyrogener Kieselsäure möglich ist und ab welchen Wassergehalten er auftreten kann, muss der Wasserleitkoeffizient $\chi(w)$ in Abhängigkeit vom Wassergehalt bekannt sein. Für VIPs aus pyrogener Kieselsäure ist dieser Zusammenhang nicht bekannt.

2.3.3. Quasistationäre Betrachtungen

Erfolgt die Messung der Wärmeleitfähigkeit, wie in Kapitel 2.2.1 erläutert, bei annähernd zeitlich konstanter und gleichmäßiger Wassergehaltsverteilung ($\nabla w \approx 0$ und somit $\nabla \varphi \approx 0$), dann lässt sich aus Gleichung (2-23) und mit der Näherung $\nabla(\varphi \cdot p_{D,sat}) = \nabla \varphi \cdot p_{D,sat} + \varphi \cdot \nabla p_{D,sat} \approx 0 + \varphi \cdot (\partial p_{D,sat} / \partial \vartheta) \cdot \nabla \vartheta$ eine äquivalente Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{D,Diffusion}$ durch Dampfdiffusion ableiten [Vri1987], [Kri1978].

$$\lambda_{D,Diffusion} = \varphi \cdot h_v \cdot \delta_D \cdot \frac{\partial p_{D,Sat}}{\partial \vartheta} = \varphi \cdot h_v \cdot \frac{D_D \cdot M_{w,mol}}{\mu \cdot (R \cdot T)} \cdot \frac{\partial p_{D,Sat}}{\partial \vartheta}. \quad (2-31)$$

$\lambda_{D,Diffusion}$ hängt von der relativen Feuchte bzw. vom Wassergehalt, vom Wasserdampfdiffusionsleitkoeffizienten und von der Steigung der Sattdampfkurve ab, die eine deutliche Temperaturabhängigkeit aufweist. Für den Sattdampfdruck gilt die empirische Beziehung [Kün1994]

$$p_{D,sat}(\vartheta) = 6,11 \cdot \text{mbar} \cdot \exp\left(\frac{a \cdot \vartheta}{\vartheta + \vartheta_0}\right), \quad (2-32)$$

mit $a = 17,08$ und $\vartheta_0 = 234,18$ °C für $\vartheta \geq 0$ °C und $a = 22,44$ und $\vartheta_0 = 272,44$ °C für $\vartheta < 0$ °C. Mit Gleichung (2-32) lässt sich $\partial p_{D,sat}(\vartheta) / \partial \vartheta$ berechnen. Bei 20 °C gilt $\partial p_{D,sat}(\vartheta) / \partial \vartheta = 145$ Pa/K.

Mit den Diffusionskoeffizienten für freie Diffusion $D_{D,\text{frei}} = 2,4 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ und für Molekulartransport $D_{D,\text{molekular}} = 3,9 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (für $20 \text{ }^\circ\text{C}$ und $d = 0,2 \text{ }\mu\text{m}$) lässt sich aus Gleichung (2-31) mit der Annahme $\mu = 1$ und $\varphi = 1$ eine obere Abschätzung für $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ ableiten. Der Maximalwert von $\lambda_{D,\text{Diffusion}}$ bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ liegt für freie Diffusion bei $0,06 \text{ W}/(\text{mK})$ und für Molekulartransport bei $0,1 \text{ W}/(\text{mK})$. Vergleicht man diese Werte mit der Wärmeleitfähigkeit von VIPs, dann wird deutlich, dass bei VIPs der Latentwärmetransport den Wärmetransport durch Wärmeleitung um ein Vielfaches übertreffen kann. Wie groß der Latentwärmetransport tatsächlich ist und wie lange er andauert, lässt sich nur durch instationäre Betrachtungen ableiten, die im Weiteren vorgestellt werden.

2.3.4. Numerische Umsetzung

In [Kün1994] wird ein numerisches Verfahren zur Lösung des instationären Wärme- und Feuchtetransports nach Gleichung (2-23) und (2-24) beschrieben. Ein an dieses Verfahren angelehntes Berechnungsmodell wurde im Rahmen dieser Arbeit eigens entwickelt und programmiert. Um mit dem modifizierten Berechnungsmodell VIPs modellieren zu können, müssen die VIP-spezifischen Transportkoeffizienten ermittelt und eingesetzt werden. Ein wesentlicher Unterschied ist die Druckabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit bei VIPs. Auch unterscheiden sich die Randbedingungen (z.B. Diffusionsdichtigkeit der VIPs). Zur Berechnung von VIPs genügt eine eindimensionale Betrachtung der Transportströme. Eine eindimensionale Diskretisierung der Gleichungen (2-23) bzw. (2-24) führt zu folgendem Differenzgleichungssystem.

$$c_i \cdot \frac{(\Phi_i^{n+1} - \Phi_i^n)}{\Delta t} \cdot \Delta x_i = \Gamma_{i-1,i} \cdot \frac{(\Phi_{i-1}^{n+1} - \Phi_i^{n+1})}{\Delta x_{i-1,i}} - \Gamma_{i,i+1} \cdot \frac{(\Phi_i^{n+1} - \Phi_{i+1}^{n+1})}{\Delta x_{i,i+1}} + S_i \cdot \Delta x_i \quad (2-33)$$

- Φ : Skalar Φ steht für die Temperatur ϑ oder für die relative Feuchte φ ,
 c_i : „Speicherfähigkeit des Volumenelements“ am Ort x_i ,
 $\Gamma_{i,j+1}$: Transportkoeffizient zwischen x_i und x_{i+1} ,
 S_i : Quelle oder Senke⁶ in x_i ,
 Δt : Zeitintervall,
 Δx_i : Ortsintervall um den Punkt x_i ,
 $\Delta x_{i,i+1}$: Abstand zwischen den Punkten x_i und x_{i+1} ,
 i, n : Index für Ort- (i) und Zeitintervall (n).

Abbildung 2-7 veranschaulicht die Diskretisierung der Ortsvariablen. Während bei Variablen mit einfachem Index (x_i , Φ_i und Δx_i) der Wert am Ort i indiziert wird, sind doppelt indizierte Größen Mittelwerte aus zwei benachbarten Intervallen ($\Delta x_{i+1,i} = (\Delta x_{i+1} + \Delta x_i)/2$ und $\Gamma_{i+1,i} = (\Gamma_{i+1} + \Gamma_i)/2$).

⁶ Im VIP ist keine Quelle oder Senke vorhanden. S wird zur numerischen Vereinfachung eingeführt. Damit in der numerischen Umsetzung der Wärmetransportgleichung (Gleichung (2-23)) ausschließlich die Temperatur als unabhängig Variable auftritt, wird der Latentwärmestrom in der Größe S zusammengefasst.

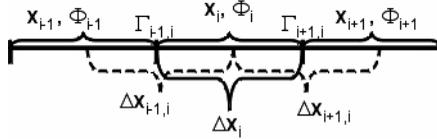


Abbildung 2-7: Veranschaulichung der Diskretisierung der Ortsvariablen und der Transportkoeffizienten in Gleichung (2-33).

Das System der diskreten Differenzgleichungen kann durch explizite oder implizite Algorithmen gelöst werden [Mar1989]. Bei expliziten Verfahren wird jeweils nach der Variable zu einem neuen Zeitpunkt aufgelöst und diese Variable aus den bekannten Variablen zum vorherigen Zeitpunkt berechnet. Bei impliziten Methoden müssen alle Variablen zum neuen Zeitpunkt simultan mittels einer Matrixgleichung gelöst werden. Explizite Verfahren lassen sich einfach implementieren, allerdings müssen bestimmte Kriterien erfüllt sein, damit das Verfahren numerisch stabil ist. Die daraus erforderliche zeitliche Diskretisierung und der zugehörige Rechenaufwand ist oft höher als bei den etwas aufwändiger zu implementierenden impliziten Lösungsverfahren. Weil implizite Verfahren numerisch sehr stabil sind und im Fall einer eindimensionalen Betrachtung der einfache und schnelle Tridiag-Algorithmus angewendet werden kann, wurde dieses implizite Lösungsverfahren gewählt. Gleichung (2-34) zeigt das implizite Gleichungssystem, das sich durch Umformulierung aus Gleichung (2-33) ergibt.

$$a_{i-1,i} \cdot \Phi_{i-1}^{n+1} + a_{i,i} \cdot \Phi_i^{n+1} + a_{i,i+1} \cdot \Phi_{i+1}^{n+1} = b. \quad (2-34)$$

- $a_{i,j}$: Matricelement i,j der Diagonalmatrix ,
 b : Bestimmungsvektor (enthält Koeffizienten zum Zeitpunkt n , Randbedingungen und Terme für Quellen oder Senken).

Die Matrix des Gleichungssystems (2-34) ist eine Tridiagonalmatrix, d.h. nur die Hauptdiagonale und die beiden unmittelbaren Nebendiagonalen sind ungleich 0. Die Gleichung der Tridiagonalmatrix lässt sich mit dem speziell dafür entwickelten Tridiag-Algorithmus [Pre1992] effektiv lösen. Tabelle 2-3 enthält die Matricelemente $a_{i,j}$ und den Bestimmungsvektor b , die sich aus den Wärme- und Feuchtetransportgleichungen (2-23) und (2-24), aus der Diskretisierung (Gleichung (2-33)) und der Umformung nach Gleichung (2-34) ergeben.

Tabelle 2-3: Matrixkoeffizienten des Gleichungssystems (Gleichung (2-33)) für den Wärme- und Feuchtetransport.

	Wärmetransport	Feuchtetransport
$a_{i,i}$	$-du_i/d\vartheta \cdot \Delta X_i/\Delta t - \lambda_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i}$ $- \lambda_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1}$	$-dw_i/d\varphi \cdot \Delta X/\Delta t - (K_\varphi)_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i} - (K_\varphi)_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1}$ $- (p_{D,sat})_i \cdot \delta_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i} - (p_{D,sat})_i \cdot \delta_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1}$
$a_{i-1,i}$	$\lambda_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i}$	$(K_\varphi)_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i} + (p_{D,sat})_{i-1} \cdot \delta_{i-1,i}/\Delta X_{i-1,i}$
$a_{i,i+1}$	$\lambda_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1}$	$(K_\varphi)_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1} + (p_{D,sat})_{i+1} \cdot \delta_{i,i+1}/\Delta X_{i,i+1}$
b	$-\vartheta_i^n \cdot du_i/d\vartheta \cdot \Delta X_i/\Delta t + S_i \cdot \Delta X_i$	$-\varphi_i^n \cdot dw_i/d\varphi \cdot \Delta X$

Da die Gleichungen (2-23) miteinander (2-24) gekoppelt sind, kann das Gleichungssystem nur iterativ durch wiederholte Nacheinander-Berechnung der beiden Gleichungen gelöst werden. Dabei müssen die Koeffizienten vor jedem neuen Berechnungsvorgang an die zuvor berechneten Temperatur- und Feuchtwerte angepasst werden. Eine stabile Lösung für einen Zeitschritt t_{n+1} ist erreicht, wenn die Änderungen der Variablen $T(x_i(t_{n+1}))$ und $\varphi(x_i(t_{n+1}))$ beim Übergang zum nächsten Iterationsschritt kleiner sind als ein vorgegebenes Abbruchkriterium.

Für die Berechnung müssen Anfangsbedingungen und Randbedingungen angegeben werden. Die Anfangsbedingungen sind die Variablenwerte $T(x_i(t_0))$ und $\varphi(x_i(t_0))$ zum Anfangszeitpunkt t_0 für alle Ortsintervalle von $i=1, \dots, m$ im VIP. Die Klimabedingungen $T(x_0(t_n))$, $\varphi(x_0(t_n))$ bzw. $T(x_{m+1}, t_n)$, $\varphi(x_{m+1}, t_n)$ an beiden Außen-seiten des VIPs (Index 0 und $m+1$) müssen für allen Zeiten t_n vorgegeben sein und stellen die Randbedingungen dar (Dirichletsche Randbedingung).

Kennt man die Foliendurchlässigkeit in Abhängigkeit von den Klimabedingungen, dann lassen sich mit dem numerischen Modell bzw. mit dem zugehörigen Computerprogramm die durch die Folie eindringenden Luft- und Dampfmen-gen und der daraus resultierende Druck- und Wassergehaltsanstieg berechnen. Da das Programm den temperaturabhängigen Dampf- und Luftdruck in jedem Ortsintervall des VIPs berechnet, lässt sich der Dampf- und Luftdruckgradient, abhängig von den Klimabedingungen und abhängig vom Luft- und Dampfdruck im VIP, angeben. Das Programm kann somit die Feuchteumlagerung im VIP und zusätzlich den Druck- und Wassergehaltsanstieg mit der Zeit, abhängig von den äußeren Klimabedingungen und abhängig vom Luft- und Dampfdruck im VIP berechnen.

Die Genauigkeit des Lösungsverfahrens hängt vom Iterationskriterium und von der Wahl der Diskretisierungsintervalle für Ort und Zeit ab. Als Abbruchkriterium für die Iteration ist es ausreichend, wenn die Änderung der Werte $T(x_i, t_n)$ bzw. $\varphi(x_i, t_n)$ für alle $i = 1, \dots, m$ zwischen zwei Iterationsschritten kleiner ist als ein Hunderstel oder ein Tausendstel Kelvin bzw. Prozent relative Feuchte. Bei Anlegen einer Temperaturdifferenz am VIP ändert sich die Temperatur und die Feuchte im VIP. Je nachdem wie schnell die Temperaturlausgleichs- und Feuchteumlagerungsprozesse ablaufen, muss das Zeitintervall gewählt werden. Bei trockenen VIPs genügen Zeitintervalle im Minutenbereich, bei VIPs mit sehr hohen Wassergehalten > 10 M-% werden kleinere Zeitintervalle im Sekundenbereich erforderlich. Für die numerische Maschenweite haben sich bei den Rechnungen Ortsintervalle im mm-Bereich bewährt. Um die richtige Wahl des Iterationskriteriums und der Diskretisierungsintervalle zu überprüfen, wird das gewählte Abbruchkriterium und die Diskretisierung um einen bestimmten Faktor verkleinert und die Ergebnisse mit den vorherigen Berechnungen verglichen. Wenn die Unterschiede in den Ergebnissen vernachlässigbar sind, dann sind Abbruchkriterium und Diskretisierung richtig gewählt, um eine ausreichend genaue numerische Lösung zu erhalten.

2.3.5. Numerische Beispielrechnungen

Mit Hilfe von Beispielrechnungen lässt sich veranschaulichen, wie schnell die Ausgleichsprozesse für Temperatur und Feuchte in einem VIP ablaufen und wie

groß die dabei transportierten Wärmemengen sind. Folgende Annahmen werden für die Berechnungen festgelegt:

- Für die Wärmeleitfähigkeit wird ein konstanter Wert von $4 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ angesetzt (Ein Einfluss der Feuchte wird nicht berücksichtigt).
- Die Adsorptionenthalpie wird mit 2500 kJ/kg angesetzt.
- Der Diffusionsleitkoeffizient sei $2,9 \cdot 10^{-10} \text{ kg/(m}\cdot\text{s}\cdot\text{Pa)}$.
- Für die Rohdichte des Kernmaterials wird 170 kg/m^3 und für die Wärmekapazität wird $850 \text{ J/(kg}\cdot\text{K)}$ angenommen. Für die Wärmekapazität von Wasser wird $4200 \text{ J/(kg}\cdot\text{K)}$ angesetzt.
- Ein Flüssigtransport sei nicht vorhanden ($K_p = 0$).
- Für die Sorptionsisotherme wird der in Abbildung 2-4 gezeigte Verlauf der Adsorptionsisotherme verwendet.

2.3.5.1 Instationärer Temperaturverlauf im VIP

Abbildung 2-8 zeigt zu verschiedenen Zeiten den Temperaturverlauf eines 2 cm dicken, trockenen VIPs mit einer gleichmäßigen Starttemperatur von $20 \text{ }^\circ\text{C}$, bei dem zum Zeitpunkt t_0 auf einer Seite eine Temperatur von $0 \text{ }^\circ\text{C}$ vorgegeben wird, während auf der anderen Seite die Temperatur bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ liegt. Die Wärmewelle dringt in wenigen Minuten in das VIP ein und hat nach ca. 15 Minuten die andere Seite erreicht. Nach 2 h hat sich in der Probe eine stationäre Temperaturverteilung eingestellt. In Abbildung 2-8 ist auch der analytisch berechnete Temperaturverlauf nach 5 Minuten eingezeichnet (analytische Lösung für Temperatursprung bei halbumendlichen Körper s. [Kre1993]). Die gute Übereinstimmung mit der numerischen Simulation verdeutlicht die Qualität der numerischen Simulation.

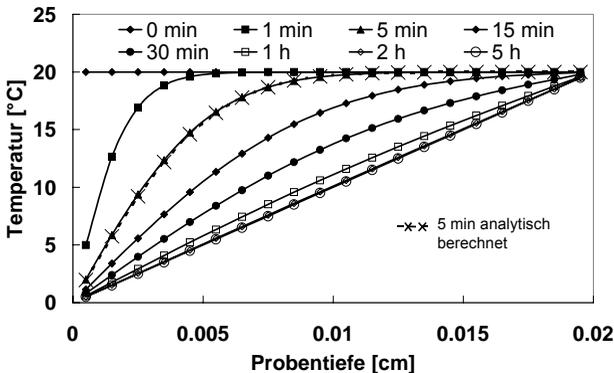


Abbildung 2-8: Temperaturverlauf zu verschiedenen Zeitpunkten in einem 2 cm dicken, trockenen VIP nach einseitigem Temperatursprung von $20 \text{ }^\circ\text{C}$ auf $0 \text{ }^\circ\text{C}$, während die zweite Seite des VIPs weiter auf $20 \text{ }^\circ\text{C}$ temperiert ist. Die Probentiefe ist im Intervall von 1 mm diskretisiert. Angegeben sind die Temperaturwerte in der Mitte der Ortsintervalle.

Abbildung 2-9 zeigt im Vergleich die zeitliche Änderung der Temperatur für ein VIP mit einem Wassergehalt von 5 M-%. Im Unterschied zu trockenen VIPs dringt

der Temperatursprung deutlich schneller in das VIP ein. Die Ursache hierfür ist der erhöhte Wärmefluss durch den Enthalpietransport. Der Temperaturverlauf wird stark von der Feuchte beeinflusst. Durch den Enthalpietransport während der Feuchteumlagerung wird die warme Seite durch Verdunsten stärker abgekühlt und die kalte Seite wird durch die Kondensation von Wasserdampf stärker erwärmt im Vergleich zum trockenen VIP. Trotz des erhöhten Energietransportes dauert es mehr als 5 Stunden bis der Temperaturverlauf stationär wird. Die Ursache hierfür ist der hohe Wassergehalt, der erst nach mehr als 5 Stunden vollständig umgelagert ist (s. Feuchteumlagerung in Abbildung 2-11).

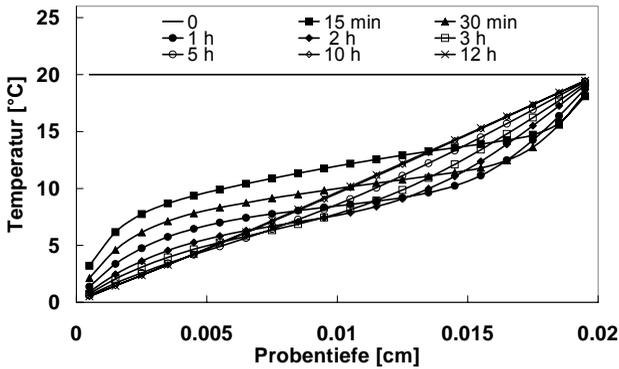


Abbildung 2-9: Temperaturverlauf zu verschiedenen Zeitpunkten in einem 2 cm dicken VIP mit $X_{w,m} = 5 \text{ M-\%}$ nach einseitigem Temperatursprung von 20 °C auf 0 °C , während die zweite Seite weiter auf 20 °C temperiert ist. Die Probtiefe ist im Intervall von 1 mm diskretisiert. Angegeben sind die Temperaturwerte in der Mitte der Intervalle.

Abbildung 2-10 zeigt die Wärmestromdichte bezogen auf die Temperaturdifferenz (entspricht im stationären Zustand dem Wärmedurchlasskoeffizienten Λ), der von der warmen Seite in das VIP einströmt. Die für die Berechnungen gewählten Randbedingungen wurden so gewählt, wie sie bei der Messung in der Plattenapparatur auftreten (0 °C auf kalter und 20 °C auf warmer Seite).

Bei trockenen VIPs und bei VIPs mit geringem Wassergehalt wird der stationäre Zustand nach ca. zwei Stunden erreicht ($\lambda = \Lambda \cdot d = q \cdot d / (\Delta T) = 4 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$). Mit zunehmendem Wassergehalt erhöht der Latentwärmestrom den Wärmefluss zu Beginn der Messung um ein Vielfaches. Mit fortlaufender Feuchteumlagerung reduziert sich der Latentwärmestrom allmählich und geht gegen Null, wenn kein Heat-Pipe-Effekt ($K_p = 0$) vorhanden ist. Allerdings wird der stationäre Zustand bei hohen Wassergehalten erst nach mehreren Stunden erreicht (bei 5 M-% länger als 5 Stunden). Ein ähnlicher zeitlicher Verlauf des Wärmeflusses ist bei den Wärmeleitfähigkeitsmessungen in der Plattenapparatur zu erwarten.

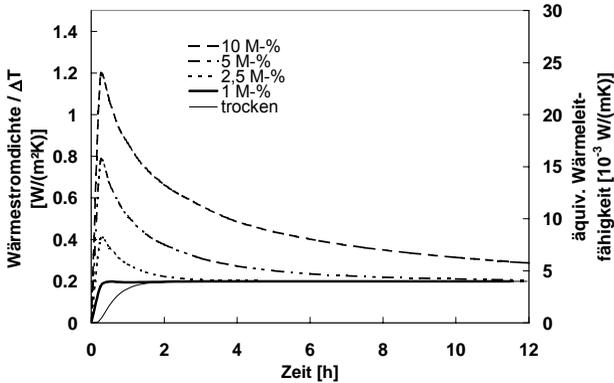


Abbildung 2-10: Verlauf der Wärmestromdichte pro Temperaturdifferenz, die von der 20 °C warmen Seite in 2 cm dicke VIPs mit unterschiedlichen Wassergehalten fließt, wobei eine Seite mit Start der Simulationsrechnung auf 0 °C temperiert wird.

2.3.5.2 Instationärer Feuchteverlauf im VIP

Die Feuchteumlagerung bestimmt wesentlich den zeitlichen Ablauf der Wärmeleitfähigkeitsmessungen. Die pro Zeit transportierte Wassermenge wird vom Produkt Dampfdiffusionskoeffizient mal Dampfdruckgradient bestimmt. Welcher Dampfdruck sich einstellt, wird von der Temperatur und vom Wassergehalt bzw. von der relativen Luftfeuchte in den Poren bestimmt ($p_D = \varphi(w) \cdot p_{D,\text{sat}}(T)$). Abbildung 2-11 zeigt, wie sich die relative Feuchte im VIP bei Wassergehalten von 1 M-% und 5 M-% im Lauf der Zeit ändert, wenn an einer Seite eines VIPs zum Zeitpunkt $t > t_0$ eine Temperatur von 0 °C anliegt.

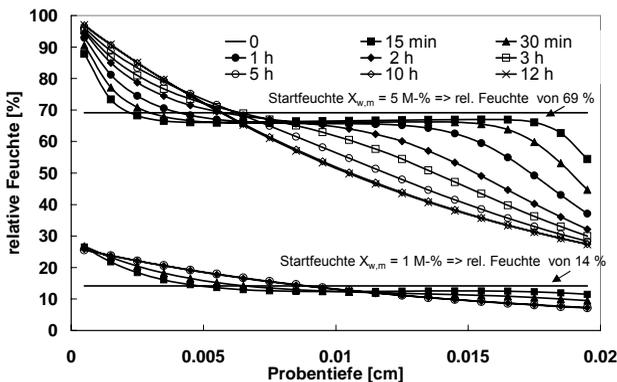


Abbildung 2-11: Verlauf der relativen Feuchte in VIPs zu verschiedenen Zeitschritten mit anfänglich gleichmäßigen Temperaturen (20 °C) und Wassergehalten (1 M-% und 5 M-%), wobei mit Start der Berechnung eine Seite auf 0 °C temperiert und die andere Seite auf 20 °C gehalten wird.

Bei einem Wassergehalt von 1 M-% bzw. bei $\varphi = 14 \%$ r.F. lagert sich die Feuchte innerhalb von 2 Stunden um, wobei die relative Feuchte an der kalten Seite auf etwa 27 % r.F. ansteigt und auf der warmen Seite auf annähernd 7 % r.F. abfällt. Bei 5 M-% dauert die Feuchteumlagerung deutlich länger, so dass nach 5 Stunden noch kein stationärer Zustand erreicht ist. Zugleich ist zu erkennen, dass die relative Feuchte an der kalten Seite sehr hoch wird ($\sim 97 \%$ r.F.), während sie auf der warmen Seite auf 27 % r.F. abfällt. Dass die Feuchteumlagerung mehrere Stunden dauert, lässt sich erklären, indem man sich veranschaulicht, welche Dampfdruckgradienten im VIP auftreten und welche Wassermengen umgelagert werden.

Abbildung 2-12 zeigt den Verlauf des Wassergehalts und den Dampfdruck in einem VIP mit einem mittleren Wassergehalt von 5 M-%. Man erkennt einen nahezu ortsunabhängigen Druckgradienten im VIP, der mit der Zeit abnimmt und im stationären Zustand verschwindet. Im Unterschied dazu konzentriert sich der Wassergehalt im Lauf der Zeit auf der kalten Seite. Ob die Simulation die stationäre Wassergehaltsverteilung richtig berechnet, lässt sich überprüfen, indem aus der Wassergehaltsverteilung $X_{w,m}(x)$ und der Sorptionsisotherme $\varphi(X_{w,m}(x))$ der Dampfdruck $p_D = \varphi(X_{w,m}(x)) \cdot p_{D,sat}(T(x))$ berechnet wird (für $T(x)$ gilt im stationären Zustand der lineare Temperaturverlauf (bei $\lambda = \text{const}$)). Es lässt sich zeigen, dass im stationären Zustand der auf diese Weise berechnete Dampfdruck, wie auch in Abbildung 2-12 zu erkennen ist, konstant ist.

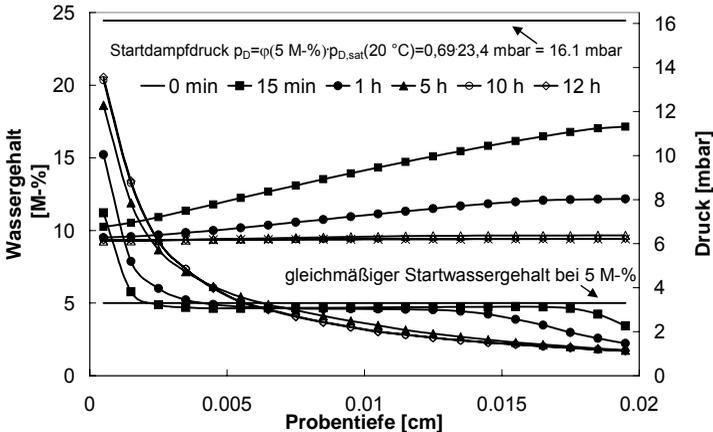


Abbildung 2-12: Verlauf des Dampfdrucks und des Wassergehalts zu verschiedenen Zeitpunkten in einem VIP mit anfänglich konstanter Temperatur von $20 \text{ }^\circ\text{C}$ und gleichmäßigem Wassergehalt von 5 Massen-%, wobei mit Start der Berechnung die linke Seite auf $0 \text{ }^\circ\text{C}$ und die rechte Seite auf $20 \text{ }^\circ\text{C}$ temperiert wird.

Mit der nachfolgenden Betrachtung werden die Massen- und Latentwärmeströme im VIP grob abgeschätzt, um eine Vorstellung von der Größenordnung der bei der Feuchteumlagerung ablaufenden Prozesse zu erhalten:

Bei 20 °C und 5 M-% stellt sich gemäß Sortionsisotherme (s. Abbildung 2-4) ein Dampfdruck von 16 mbar ein. Sobald 0 °C an einer Seite vorgegeben werden, kühlt sich das VIP ab und der Dampfdruck sinkt ($p_D = \varphi(w) \cdot p_{D,sat}(T)$). Dadurch baut sich im VIP ein Dampfdruckgefälle auf, das, geschätzt als Mittelwert über die Probe, nach 15 min ca. (4,5 mbar/2 cm), nach 1 h ca. (2 mbar/2 cm) und nach 5 h etwa (0,2 mbar/2 cm) beträgt. Aus diesem Dampfdruckgefälle lässt sich die Massenflussdichte $\delta_D \cdot \Delta p_D / \Delta x$ und die Wärmeflussdichte $h_{Ad} \cdot \delta_D \cdot \Delta p_D / \Delta x$ abschätzen. Die so geschätzte Massenflussdichte beträgt ungefähr 0,40 g/(m²·min) nach 15 min, 0,17 g/(m²·min) nach 1 h und 0,017 g/(m²·min) nach 5 h. In einem 2 cm dicken VIP mit $\rho = 170 \text{ kg/m}^3$ sind bei 5 M-% ca. 170 g/m² an Wasser enthalten. Die insgesamt umgelagerte Wassermenge lässt sich vereinfacht abschätzen, indem man annimmt, dass die Abnahme des Wassergehalts in der einen Hälfte des VIPs, das an der warmen Seite anliegt, durch Diffusion in die andere kältere Hälfte transportiert wird (Wassergehalt nimmt in warmer Hälfte von 5 M-% auf im Mittel etwa 1,7 M-% ab, s. rechte Hälfte in Abbildung 2-12). Diese grobe Abschätzung ergibt eine insgesamt umgelagerten Wassermenge von ca. 55 g/m². Anhand der abgeschätzten Massenflussdichte wird deutlich, dass diese Wassermenge erst nach Stunden umgelagert sein kann.

Mit dem Massentransport wird eine Latentwärmestromdichte transportiert ($q_{\text{Diffusion}} = h_{Ad} \cdot \delta_D \cdot \Delta p_D / \Delta x$, mit $h_{Ad} \approx 2500 \text{ kJ/kg}$). Die auf die anliegende Temperaturdifferenz von 20 °C bezogene Wärmestromdichte ($q_{\text{Diffusion}} / \Delta T$) beträgt etwa 0,83 W/(m²·K) nach 15 min, 0,35 W/(m²·K) nach 1 h und 0,035 W/(m²·K) nach 5 h (vgl. auch Abbildung 2-10). Multipliziert man diese Größe mit der Probendicke ($(q_{\text{Diffusion}} / \Delta T) \cdot D_{\text{Probe}}$), dann erhält man eine zur Wärmeleitfähigkeit äquivalente, allerdings zeitabhängige Größe. Sie beträgt nach 15 min $16,6 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$, nach 1 h $7,1 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ und nach 5 h $0,7 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$. Auch nach 5 h ist noch ein deutlicher Latentwärmetransport vorhanden. Diese Abschätzungen zeigen deutlich, wie stark und wie lange der Massentransport den Wärmetransport beeinflusst.

An der kalten Seite des VIPs treten hohe Luftfeuchten und hohe Wasserkonzentrationsgradienten $dw/dx = \rho \cdot dx_{w,m} / dx$ auf. Der Gradient dw/dx erreicht dort im stationären Zustand eine Größenordnung von 10^4 kg/m^4 . Nimmt man einen Wasserleitkoeffizienten von $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ an (typischer Wert für Oberflächendiffusion, s. Kapitel 2.3.1), dann ergibt sich lokal eine Flüssigmassenstromdichte von 0,06 g/(m²·min). Bei kapillarem Flüssigtransport kann der Wasserleitkoeffizient und somit die Flüssigmassenstromdichte um mehrere Größenordnungen höher sein. Nach Gleichung (2-30) wird im stationären Zustand (bei $\chi > 0$) ein gleich großer, dem Flüssigmassenstrom entgegen gerichteter Dampfstrom auftreten. Wie im vorigen Abschnitt lässt sich die Dampfstromdichte in eine Latentwärmestromdichte $q_{\text{Diffusion}}$ und in eine zur Wärmeleitfähigkeit äquivalente Größe ($(q_{\text{Diffusion}} / \Delta T) \cdot D_{\text{Probe}}$) umrechnen. Bei 0,06 g/(m²·min) ergibt sich ein Wert von $2,5 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$. Mit dieser groben Abschätzung lässt sich veranschaulichen, dass der Heat-Pipe-Effekt die Wärmeleitfähigkeit von VIPs nennenswert beeinflussen kann.

2.4. Durchlässigkeit von Folienumhüllungen

Die Folienumhüllungen von Vakuumisolationspaneelen müssen ausreichend gasdicht sein, damit das Vakuum im VIP über Jahre hinweg erhalten bleibt. Reine Kunststofffolien weisen als VIP-Umhüllung zu große Durchlässigkeiten für trockene Luftgase (N₂, O₂, CO₂,...) und Wasserdampf (H₂O) auf. Deswegen werden in der Regel Mehrschichtfoliensysteme mit anorganischen Sperrschichten verwendet: z.B. Aluminiumverbundfolien (6 - 10 µm dicke Aluminiumfolie, beidseitig mit Kunststoffolie laminiert) oder metallbedampfte Mehrschichtfolien (Dicke einer Bedampfungsschicht ca. 30 – 80 nm). Abbildung 2-13 veranschaulicht den Schichtaufbau dieser beiden Folientypen.

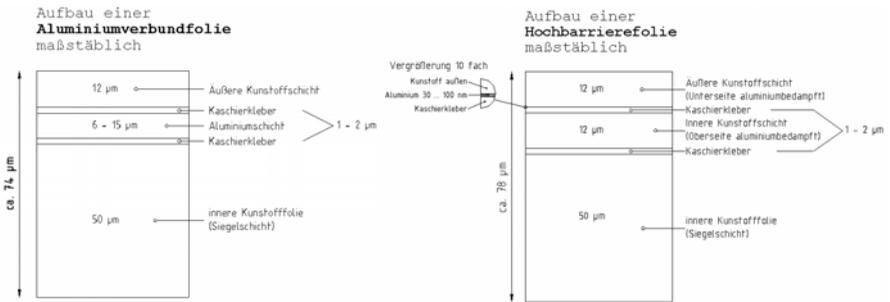


Abbildung 2-13: Querschnitte einer Aluminiumverbundfolie (links) und einer metallbedampften Mehrschichtfolie (rechts).

2.4.1. Permeation durch reinen Kunststoff

Der Stofftransport von Substanzen durch einen Körper wird allgemein als Permeation bezeichnet. Bei Kunststoffen ist der die Permeation verursachende Transportmechanismus die Lösungsdiffusion, d.h. die Permeation setzt sich zusammen aus der Adsorption und der Lösung des Gases im Kunststoff, dem Stofftransport durch Diffusion und der Desorption auf der Sekundärseite. Die Diffusion im stationären Zustand lässt sich durch das 1. Ficksche Gesetz beschreiben, gemäß dem die Teilchenstromdichte J proportional dem Gradienten der Teilchenkonzentration c ist [Vie1993]:

$$J = -D \cdot \frac{\partial c}{\partial x} \quad (2-35)$$

Der Proportionalitätsfaktor ist der Diffusionskoeffizient D . Wenn D konstant ist, d.h. unabhängig von der Konzentration des diffundierenden Gases, erhält man durch Integration

$$J = D \cdot \frac{c_1 - c_2}{d} \quad (2-36)$$

wobei d die Foliendicke ist und c_i die Konzentration auf Vorder- und Rückseite der Folie angibt.

Leichter messbar als die Oberflächenkonzentration c ist der Gasdruck p , der an der Folie anliegt. Zwischen Druck und Oberflächenkonzentration gilt für viele Gas-Kunststoff-Systeme, das Henrysche Gesetz mit

$$c = S \cdot p, \quad (2-37)$$

wobei S der Löslichkeitskoeffizient ist. Wenn S und D konzentrationsunabhängig sind, so folgt aus Gleichung (2-36) und (2-37)

$$J = D \cdot S \cdot \frac{p_1 - p_2}{d} = P \cdot \frac{\Delta p}{d} = Q \cdot \Delta p, \quad (2-38)$$

mit dem Permeationskoeffizienten $P = D \cdot S$ (der Permeationskoeffizient wird auch als Permeabilität bezeichnet). Anstelle des materialspezifische Permeationskoeffizienten wird oft die folienspezifische Durchlässigkeit $Q = P/d$ angegeben.

Gleichung (2-38) ist nur dann gültig [Vie1993], wenn die Membran homogen und isotrop ist, d.h. keine Struktureinflüsse durch stressinduzierte und orientierte Polymerketten bestehen. Damit verläuft die stationäre Diffusion in Richtung des Konzentrationsgradienten. Darüber hinaus muss das Henrysche Gesetz gelten und die Sorptionsprozesse müssen schneller ablaufen als die Diffusionsprozesse, damit Gleichgewicht zwischen Gasphase und sorbierter Phase angenommen werden kann.

Da sich die Temperaturabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten und des Löslichkeitskoeffizienten mit einem Arrheniusansatz beschreiben lassen [Utz1995], ergibt sich auch eine exponentielle Abhängigkeit der Permeation von der Temperatur.

$$P(T) = P(T_0) \cdot \exp\left(\frac{-E_P}{R \cdot T} + \frac{E_P}{R \cdot T_0}\right). \quad (2-39)$$

E_P ist die Aktivierungsenergie der Permeation, die sich als Summe aus der Aktivierungsenergie E_D für Diffusion und der Lösungswärme ΔH_L ergibt ($E_P = E_D + \Delta H_L$).

Ob der Permeationskoeffizient P konstant ist, d.h. ob die Diffusions- und Löslichkeitskoeffizienten bei realen Polymer-Gas-Systemen konzentrationsunabhängig sind, hängt stark von der Polymerart und vom Gastyp ab. Bei den Polymeren ist zwischen gummi- oder glasartigen Kunststoffen zu unterscheiden. Bei Gasen muss zwischen kondensierbaren und nicht kondensierbaren Gasen differenziert werden. Gummiartige Kunststoffe weisen für nicht kondensierbare Gase in der Regel konstante Permeationskoeffizienten auf. Bei glasartigen Kunststoffen erstarren die Polymerketten beim Abkühlen unter die sog. Glasatemperatur T_g . Das

System ist metastabil und nicht im thermodynamischen Gleichgewicht. Strukturbedingt können bei Kunststoffen unterhalb der Glasatemperatur konzentrationsabhängige Koeffizienten für Diffusion und Lösung auftreten. Eine phänomenologische Theorie, die das Verhalten von glasartigen Kunststoffen bei nichtkondensierbaren Gasen beschreibt, ist die Dual-Sorptions-Theorie. Man nimmt an, dass ein Teil der Gasmoleküle sich entsprechend dem Henryschen Gesetz im Kunststoff löst, während die restlichen Gasmoleküle in den erstarrten Mikrohöhlen adsorbiert sind, wobei ein Sorptionsverhalten nach Langmuir mit entsprechend konzentrationsabhängigen Löslichkeitskoeffizienten angenommen wird [Utz1995].

Während sich die Diffusion von nichtkondensierbaren Gasen in gummi- und glasartigen Polymeren durch relativ einfache Modelle beschreiben lassen, treten bei kondensierbaren Gasen, d.h. Gasen, deren kritische Temperatur T_c größer ist als die Umgebungstemperatur komplizierte Wechselwirkungen zwischen Gas und Polymer auf. Die Diffusions- und Löslichkeitskoeffizienten sind bei gummiartigen Kunststoffen meist konzentrationsabhängig, bei glasartigen Kunststoffen können sie sogar von der Vorbehandlung der Polymere abhängen.

Die Kunststoffe, die bei den in dieser Arbeit verwendeten Folien verwendet werden, sind Polyethylen (PE), Polypropylen (PP) und Polyethylenterephthalat (PET). Es wird ausschließlich das Gasmisch Luft untersucht, das aus den trockenen Luftgasen (N_2 , O_2 , CO_2 ,...) und Wasserdampf besteht (H_2O). Tabelle 2-4 und Tabelle 2-5 enthalten die Glasatemperaturen und die kritischen Temperaturen für die genannten Polymere.

Tabelle 2-4: Glasatemperaturen für die Polymere PET, PE und PP [Bry1989].

Polymer	Glasatemperatur [°C]
PET	67
PE	-20
PP	5

Tabelle 2-5: Kritische Temperaturen für Sauerstoff, Stickstoff und Wasserdampf [Atk1978].

Gasart	Kritische Temperatur [°C]
Stickstoff	-118
Sauerstoff	-147
Wasserdampf	374

Im Gegensatz zu PE und PP liegt PET mit $T_g = 67 \text{ °C}$ bei Zimmertemperatur im glasartigen Zustand vor. Bei den Gasen ist der Wasserdampf mit $T_c = 374 \text{ °C}$ kondensierbar, so dass hier konzentrationsabhängige Permeationskoeffizienten zu erwarten sind. Bei PET ist sogar eine Abhängigkeit der Durchlässigkeit von der Vorbehandlung möglich. Darüber hinaus ist zu beachten, dass die Durchlässigkeit von Kunststoffen für trockene Luftgase von der Luftfeuchte abhängen kann.

Während bei reinen Kunststoffen die Transportprozesse sich durch entsprechende Modelle beschreiben lassen, sind die Transportvorgänge in Mehrschichtfolien,

insbesondere mit anorganischen Sperrschichten, im Detail noch nicht vollständig erforscht und lassen sich nur schwer quantifizieren. Dennoch sind gewisse Zusammenhänge aus den bisherigen Überlegungen ableitbar.

2.4.2. Durchlässigkeit von Mehrschichtfolien mit anorganischen Sperrschichten

Bei konstantem Massenstrom J durch Mehrschichtfolien ohne anorganische Sperrschichten kann, in Analogie zum Wärmetransport, die Permeationskonstante der Verbundfolie $P_{\text{Verbundfolie}}$ durch Addition der Permeationswiderstände d_i/P_i und Kehrwertbildung berechnet werden [Utz1995].

$$\frac{P_{\text{Verbundfolie}}}{d} = \left(\sum_i \frac{d_i}{P_i} \right)^{-1} = \left(\sum_i \frac{1}{Q_i} \right)^{-1} = Q_{\text{Verbundfolie}} \quad (2-40)$$

Bei Folienverbunden wird anstelle der Permeationskonstante üblicherweise die folienspezifische Durchlässigkeit Q verwendet. Nach Gleichung (2-38) kann diese Größe unmittelbar aus der Messung des Massenstromes bei bekanntem Druckgradienten Δp ermittelt werden.

Anorganische Schichten in Mehrschichtfolien bestehen entweder aus metallischen Folien, die beidseitig mit Kunststofffolien laminiert sind, oder metallbedampften Kunststofffolien, die miteinander verklebt sind. Auch Beschichtungen aus SiO_x und AlO_x sind möglich. Mit diesen anorganischen Schichten lassen sich theoretisch beliebig dichte Folien herstellen, da die anorganischen Schichten für viele Gase weitestgehend gasdicht sind. Der Gastransport findet vor allem über Defekte in der anorganischen Schicht statt. Für einfach beschichtete Folien mit kreisförmigen Defekten gilt näherungsweise folgende Abschätzung für die Durchlässigkeit [Lan1998].

$$Q_{\text{beschichtet}} = Q_{\text{unbeschichtet}} \cdot n \cdot \pi \cdot r_0^2 \cdot (1 + 1,18 \cdot d/r_0) \quad (2-41)$$

wobei r_0 der mittlere Defektradius, d die Foliendicke und n die Zahl der Poren pro Flächeneinheit angibt.

In der Praxis bestehen Mehrschichtfolien aus mehreren Kunststofffolien und oft aus mehreren Sperrschichten, die mittels Kaschierklebern miteinander verklebt sind. Gleichung (2-41) ist deswegen nicht anwendbar. Dennoch lassen sich einige Eigenschaften von Mehrschichtfolien damit erklären. So wird z.B. die Temperaturabhängigkeit von Mehrschichtfolien von der Temperaturabhängigkeit des Kunststoffs bestimmt, der an die Sperrschicht angrenzt [Lan1998]. Auch stehen die Durchlässigkeiten verschiedener Gase bei beschichteten Folien im gleichen Verhältnis wie beim unbeschichteten Material.

Wie Untersuchungen mit Lichtporenanalyse an einfach beschichteten Foliensystemen mit metallischen Sperrschichten gezeigt haben, verläuft die Permeation trockener Luftgase vor allem über die Defekte [Utz1995]. Bei Wasserdampf deu-

ten die Untersuchungen auf weitere Transportmechanismen hin, die wahrscheinlich die metallische Schicht durchdringen. Die Transportmechanismen sind noch nicht im Detail verstanden. Vermutet werden De- und Adsorptionsvorgänge zwischen Polymer und metallischer Schicht, verbunden mit Kapillartransport.

2.4.3. Durchlässigkeit der VIP-Folienumhüllung

Bisher haben wir nur die flächenbezogenen Durchlässigkeit von Folientypen diskutiert. In unseren Untersuchungen betrachten wir nicht nur die Folien selbst, sondern das komplette VIP mit versiegelter Folienumhüllung. Zusätzlich zur Permeation durch die Fläche können Gase auch durch die Siegelnaht in das VIP eindringen. Da diese Transportwege voneinander unabhängig sind, lässt sich die Gesamtdurchlässigkeit eines VIPs folgendermaßen angeben.

$$Q_{\text{Gas,gesamt}} = Q_{\text{Gas,F}}(T, \varphi) \cdot F + Q_{\text{Gas,L}}(T, \varphi) \cdot L. \quad (2-42)$$

Analog zur Betrachtung von Wärmeflüssen durch Flächen mit längenförmigen Wärmebrücken wird hier zusätzlich zur Durchlässigkeit pro Einheitsfläche $Q_{\text{Gas,F}}$ die längenbezogene Durchlässigkeit $Q_{\text{Gas,L}}$ verwendet. Als Fläche F wird die vollständige VIP-Fläche mit Vorder- und Rückseite und als Länge L der Umfang des VIPs angesetzt. Bei den hier untersuchten VIPs verläuft die Siegelnaht immer entlang des Paneelumfangs. Wie bei einfachen Kunststofffolien können die einzelnen Durchlässigkeiten explizit von der Temperatur und der relativen Feuchte abhängen. Der Index „Gas“ steht für ein einzelnes Gas oder für eine Gasmischung. Wenn die Längendurchlässigkeit ausschließlich von der Siegelnaht selbst, und nicht etwa von Defekten neben der Naht, verursacht wird, dann lässt sich aus der Permeabilität P des Siegelmaterials die Längendurchlässigkeit theoretisch abschätzen. Mit der Dicke d und der Breite b der Siegelnaht erhält man die theoretische Längendurchlässigkeit der Siegelnaht aus

$$Q_{\text{Gas,L}} = P_{\text{Gas}} \cdot \frac{d}{b}. \quad (2-43)$$

Abbildung 2-14 zeigt die Dicke d und die Breite b bei der Siegelnaht.

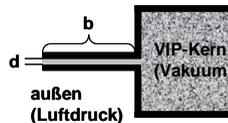


Abbildung 2-14: Skizze der VIP-Siegelnaht.

Die Gesamtdurchlässigkeiten geben die Stoffmengen an, die pro Zeit und pro Druckdifferenz die Umhüllung durchdringen. Dabei ist es bei Folien üblich, die Stoffmengen der Gase als Volumen in cm^3 bei Standardbedingungen ($p = 1,013$ bar und $T = 0$ °C) anzugeben. Beim Wasserdampf sind die Durchlässigkeiten so groß, dass die Stoffmenge in g angegeben wird (eine Flächendurchlässigkeit von $1 \text{ g}/(\text{m}^2\text{d})$ bei 21 mbar entspricht bei 23 °C einer Durchlässigkeit von ca. $59000 \text{ cm}^3/(\text{m}^2\text{d})$). Dabei ist es üblich, die Dampfdurchlässigkeit nicht auf die Druckdiffe-

renz zu beziehen, sondern das Produkt $Q \cdot \Delta p$ als Wasserdampfdurchlässigkeit Q' zu bezeichnen. Diese Größe ist äquivalent zur Massenzunahme pro Zeiteinheit. Anhand der eindringenden Stoffmengen pro Zeit lassen sich Druckanstiegsraten durch Luft und die Massenanstiegsraten durch eindringenden Wasserdampf berechnen. Aus der idealen Gasgleichung und der Massenbilanz lässt sich für die Druckanstiegsrate im Paneel die folgende Beziehung ableiten.

$$\dot{p}_{\text{Luft}} = \frac{Q_{\text{Luft,gesamt}} \cdot \Delta p_{\text{Luft}}}{V_{\text{eff}}} \cdot \left(\frac{T_m \cdot p_0}{T_0} \right) \quad (2-44)$$

- $Q_{\text{Luft,gesamt}}$: die Durchlässigkeit $Q_{\text{ges,Luft}}$ für Luft in $\text{cm}^3(\text{STP})/(\text{d bar})$ gibt an, welches Gasvolumen bei den Standardbedingungen (STP mit $p = 1,013$ bar und $T = 0$ °C) durch die Umhüllung eindringt. Wird die Durchlässigkeit in dieser Arbeit in $\text{cm}^3/(\text{d bar})$ angegeben, dann entspricht dies der Durchlässigkeit bei Messbedingungen (~ 20 °C, $\sim 1,013$ bar).
- Δp_{Luft} : über die VIP-Folie anliegende Druckdifferenz. Sie entspricht im evakuierten Zustand dem Atmosphärendruck p_{atm} .
- V_{eff} : effektives Porenvolumen im VIP. V_{eff} erhält man, wenn man das Volumen des Kernmaterials mit dessen Porosität multipliziert.
- $(T_m \cdot p_0)/T_0$: Umrechnung von Norm- (Index 0) auf Messbedingung (Index m).

Der Druckanstieg im VIP wird vom Verhältnis Durchlässigkeit zu Volumen bestimmt. Wenn die Durchlässigkeit nur von der Fläche bestimmt wird, ist der Druckanstieg unabhängig von der Paneelfläche und nur noch proportional zum Kehrwert der Paneeldicke D (Beispiel für quadratische Paneele mit Kantenlänge K : mit $Q_{\text{ges,Luft}} = Q_{\text{F,Luft}} \cdot F$ folgt $dp_{\text{Luft}}/dt \sim Q_{\text{L,Luft}} \cdot F/V = Q_{\text{F,Luft}} \cdot 2 \cdot K^2/(K^2 \cdot d) = Q_{\text{F,Luft}} \cdot 2/D$). Bei ausschließlicher Längendurchlässigkeit ist der Druckanstieg proportional zum Kehrwert von Umfang L und Dicke D (Beispiel für quadratische Paneele mit Kantenlänge K : mit $Q_{\text{ges,Luft}} = Q_{\text{L,Luft}} \cdot L$ folgt $dp_{\text{Luft}}/dt \sim Q_{\text{L,Luft}} \cdot L/V = Q_{\text{L,Luft}} \cdot 4 \cdot K/(K^2 \cdot D) = Q_{\text{L,Luft}} \cdot 4/(K \cdot D) = Q_{\text{L,Luft}} \cdot 16/(L \cdot D)$).

Für die Massenzunahme pro Zeit gilt folgender Zusammenhang.

$$\dot{m}_{\text{Wasser}} = Q'_{\text{Dampf,gesamt}} = Q_{\text{Dampf,gesamt}} \cdot \Delta p_{\text{Dampf}} \quad (2-45)$$

- $Q'_{\text{Dampf,gesamt}}$: die Gesamtdurchlässigkeit für Wasserdampf gibt an, welche Menge in g/d in das VIP eindringt.
- $Q_{\text{Dampf,gesamt}}$: druckbezogene Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit.

Die Massenzunahme wird meist in g/d, in $\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ oder in Massenprozent pro Jahr ($\text{M}\text{-}\%/a$), bezogen auf die Trockenmasse des VIP-Kerns, angegeben. Je nach Bezugsgröße ändert sich die Abhängigkeit von der Paneelgröße.

Um die Durchlässigkeit aus Druckanstiegen ermitteln zu können, muss Gleichung (2-44) nach der Durchlässigkeit aufgelöst werden.

$$Q_{\text{Luft,gesamt}} = Q_{\text{Luft,F}} \cdot F + Q_{\text{Luft,L}} \cdot L = \frac{\dot{p}_{\text{Luft}} \cdot V_{\text{eff}}}{T_m \cdot k_B} \cdot \left(\frac{T_0 \cdot k_B}{p_0} \right) \cdot \frac{1}{\Delta p_{\text{Luft}}} \quad (2-46)$$

Die Größe $(dp_{\text{Luft}}/dt) \cdot V_{\text{eff}} / (T_m \cdot k_B)$ ist die pro Zeit in das VIP eindringende Teilchenzahl ($k_B = \text{Boltzmannkonstante}$). Mit dem Faktor $(T_0 \cdot k_B) / p_0$ wird die Teilchenzahl in ein Volumen bei Normbedingung umgerechnet. Mit dem Faktor $1/\Delta p_{\text{Luft}}$ wird das pro Zeit eindringende Volumen auf die anliegende Druckdifferenz bezogen. Bei Folien ist es üblich, die eindiffundierende Gasmenge als Volumen bei Normbedingungen anzugeben. In der Vakuumtechnik wird dagegen oft das zur Teilchenzahl proportionale Produkt $p \cdot V$ zur Angabe der Gasmenge verwendet. Als Einheit wird meist mbar·Liter verwendet. Mit Gleichung (2-46) können diese „Gasmengen“ ineinander umgerechnet werden. Gibt man die Durchlässigkeit nicht bei Normtemperatur, sondern bei Messtemperatur an und macht die Näherung $p_0 = 1 \text{ bar}$ und $\Delta p_{\text{Luft}} = p_{\text{atm}} = 1 \text{ bar}$, dann entspricht 1 cm^3 Gasvolumen einer „Gasmenge“ von $1 \text{ mbar} \cdot \text{Liter}$. Diese in der Praxis übliche Näherung wird auch in dieser Arbeit bei der Berechnung der Durchlässigkeit angewandt. Die Volumenangabe der Durchlässigkeit erfolgt in cm^3 . Wenn die Durchlässigkeit explizit auf Standardbedingungen umgerechnet wird, dann wird das Volumen angegeben als $\text{cm}^3(\text{STP})$.

3 Messverfahren und Messprogramme

3.1. Folienabhebeverfahren und Wägung

Für die Bestimmung der Luftdurchlässigkeit einer Umhüllung muss der Druckanstieg im VIP gemessen werden. Die in dieser Arbeit verwendeten VIPs mit Folienumhüllung wurden bei Innendrucke $> 0,5$ mbar vermessen. Hierfür ist das Folienabhebeverfahren, das in Abbildung 3-1 skizziert ist, geeignet. Zur Druckmessung wird das VIP in eine Vakuumkammer eingebracht und die Kammer evakuiert. Sobald der Druck in der Kammer kleiner wird als der Druck im VIP, hebt sich die Folie). Der Abhebezeitpunkt kann mit dem Auge oder mit einer Lichtschranke detektiert werden. Der Druck in der Kammer zum Abhebezeitpunkt entspricht in etwa dem VIP-Innendruck⁷.

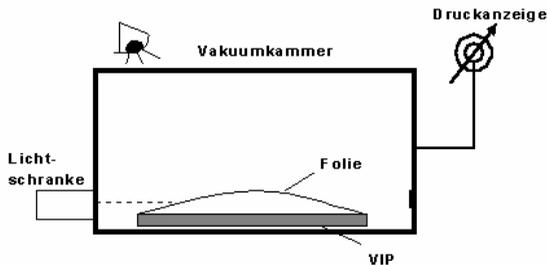


Abbildung 3-1: Skizze des Messprinzips beim Folienabhebeverfahren [Kol1993].

Die Reproduzierbarkeit der Messung ist vor allem durch die Ablesegenauigkeit gegeben, die wiederum vom Druckniveau abhängt, bei dem gemessen wird (bei höheren Druckwerten sinkt der Druck schneller, was die Ablesegenauigkeit verschlechtert). Für die Ablesegenauigkeit soll eine grob vereinfachte Abschätzung hinsichtlich der gemessenen Druckwerte bis ca. 50 mbar angenommen werden: $\pm 0,2$ mbar bis 3 mbar, $\pm 0,5$ bis 10 mbar, ± 1 mbar ab 10 mbar. Zur Druckanzeige werden zwei kapazitive Absolutdruckmesser der Fa. MKS verwendet (mit Messbereichen bis 10 mbar (Typ 121AA) und bis 100 mbar (Typ 127AA)). Die Druckaufnehmer sind temperaturabhängig und weisen bei Schwankungen von ± 5 K eine Genauigkeit von ungefähr 1 % (10 mbar-Sensor) bzw. 0,35 % (100 mbar-Sensor) vom Messwert auf (vernachlässigt wurde ein schwacher Temperatureinfluss auf den Nullpunkt). Die Temperatur beeinflusst auch den Druck im VIP. Für Luft als annähernd ideales Gas bei 20 °C ändert sich der Druck um ca. 0,3 %/K ($[dp_L(T)/dT]/p_L(293) = 1/(293 \text{ K}) \approx 0,3 \text{ \%}/\text{K}$).

⁷ Der Druck in der Vakuumkammer zum Abhebezeitpunkt ist abhängig vom Abhebekriterium, z.B. Anordnung der Lichtschranke, und ist deswegen nicht exakt identisch mit dem VIP-Innendruck. Mit dem Folienabhebeverfahren sollen nur Druckanstiege gemessen werden, deswegen muss der Abhebedruck nicht dem VIP-Innendruck entsprechen, er muss sich nur genauso ändern. Dies wurde in [Rau2002] durch vergleichende Messungen mit eingebauten Drucksensoren überprüft.

Wenn der Druck im VIP nicht von Luft sondern von Wasserdampf hervorgerufen wird, erhält man eine stärkere Temperaturabhängigkeit für den VIP-Innendruck. Mit der Annahme einer temperaturunabhängigen Sorptionsisotherme ergibt sich ein Temperatureinfluss von ungefähr 6 %/K ($[(dp_{D,sat}(\vartheta)/d\vartheta)/p_{D,sat}(20\text{ °C})] \approx 6,0\text{ \%}/K$ bei $\vartheta = 20\text{ °C}$, da wegen $p_D = \varphi \cdot p_{D,sat}(\vartheta)$ die Sattdampfkurve die Temperaturabhängigkeit bestimmt).

Mit den Folienumhüllungen der VIPs sind (bei Raumtemperatur) Druckanstiege unter 1 mbar/a erreichbar. Um so niedrige Druckanstiegsraten mit dem hier beschriebenen Folienabhebeverfahren auflösen zu können, sind lange Messzeiten erforderlich, in denen der Druck regelmäßig gemessen wird. Die Messzeiträume betragen annähernd ein Jahr, wobei der VIP-Innendruck ungefähr alle zwei bis vier Wochen gemessen wurde. Die Druckanstiege mit der Zeit sind annähernd linear, so dass eine mittlere Druckanstiegsrate durch lineare Regression ermittelt werden kann (mittlere Druckanstiegsrate = Steigung der Regressionsgerade). Die Schwankungen der Druckmessungen führen zu Abweichungen vom mittleren Druckanstieg. Aus diesen Abweichungen ermittelt die Regression zusätzlich den Fehler der mittleren Druckanstiegsrate. Bei der Bestimmung der Druckanstiegsraten wird dieser Wert als Fehlerangabe verwendet.

Die Dampfdurchlässigkeit der Umhüllung wird aus der Massenzunahme der VIPs durch eindringenden Wasserdampf, der vom Material adsorbiert wird, mittels wiederholter Wägung bestimmt. Die Wägung wird zusätzlich zur Druckmessung, d.h. im Rhythmus von zwei bis vier Wochen, durchgeführt. Die Reproduzierbarkeit der Waage (Ohaus Explorer 4100) beträgt $\pm 0,02\text{ g}$. Die Waage verfügt über eine interne, automatisierte Kalibriervorrichtung, mit der sich die Waage vor den Wägungen kalibrieren lässt, um Drifteffekte oder Temperatureinflüsse zwischen den Messzeiträumen zu beseitigen. Die Auflagefläche der Waage beträgt $20 \times 20\text{ cm}^2$. Werden größere Paneelformate gewogen, dann beeinflussen Konvektionseffekte die Reproduzierbarkeit. Bei $40 \times 40\text{ cm}^2$ großen Paneelen beträgt die Reproduzierbarkeit ungefähr $\pm 0,05\text{ g}$. Die Massenanstiegsraten lassen sich analog zu den Druckanstiegsraten mittels linearer Regression bestimmen.

Für die Druckanstiegsmessungen stehen neben dem Folienabhebeverfahren weitere Verfahren zur Verfügung. Eine Möglichkeit ist der Einbau von Drucksensoren in das VIP, die z.B. über ein Schallsignal oder über Funk den Druckwert ausgeben. Aufgrund der hohen Anzahl an Paneelen, die gemessen werden sollten, war diese Vorgehensweise zu (kosten-)aufwändig und nicht praktikabel. Ein weiteres Verfahren ist das Spinning-Rotor-Gauge-Verfahren [Man1997]: über Luftreibungseffekte an einer rotierenden Kugel lässt sich der Druck sehr genau messen. Dieses Verfahren ist für den hier untersuchten Druckbereich $> 0,1\text{ mbar}$ nicht geeignet. Das va-Q-check-Verfahren [Cap2003a] der Fa. va-Q-tec AG bestimmt von außen den VIP-Innendruck über eine quasistationäre Wärmeleitfähigkeitsmessung. Dazu wird der Wärmefluss einer Heizquelle gemessen, der durch ein grobporiges Vlies in eine Metallplatte fließt (Vlies und Metallplatte müssen bei der Fertigung in das VIP eingebracht werden) [Cap2003b]. Als die Messungen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, war dieses Verfahren jedoch noch nicht bekannt bzw. noch in Entwicklung.

3.2. Verfahren zur Messung der Wärmeleitfähigkeit

Die Messung der Wärmeleitfähigkeit von VIPs wurde mit der Einplattenapparatrola V (LOW Lambda) durchgeführt. Abbildung 3-2 zeigt eine schematische Darstellung der für die Messungen verwendeten Apparatur LOLA V. Die Apparatur besteht aus einer zentralen Heizplatte mit einer Fläche $A = 20 \times 20 \text{ cm}^2$. Die zentrale Heizplatte wird elektrisch mit einer konstanten Leistung P beheizt, so dass sich eine vorgegebene Temperatur T_w auf der warmen Seite einstellt. Der innere 6 cm breite Schutzring wird ebenfalls elektrisch beheizt, während der äußere, auch unter der Heizplatte angebrachte Schutzring durch einen Thermostat temperiert wird. Die Schutzringe werden auf die Temperatur T_w geregelt, um lateralen oder nach unten fließenden Wärmestrom zu verhindern, damit die Heizleistung ausschließlich senkrecht nach oben durch die Probe zur Kühlplatte fließt. Die Temperatur T_k auf der kalten Seite wird über einen Thermostaten vorgegeben. Die Regelung der elektrisch beheizbaren zentralen Platte und des inneren Schutzrings erfolgt computergesteuert. Die Heizleistung der zentralen Platte wird über einen Proportional-Integral-Regler mit der Regelgröße $T_{w,\text{soll}} - T_{w,\text{ist}}$ angepasst. Der innere Schutzring wird ebenso geregelt, wobei die Regelgröße die Thermospannung der Thermokette ist, welche die Temperaturdifferenz zwischen zentraler Heizplatte und innerem Schutzring misst.

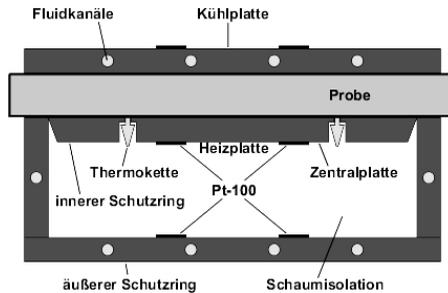


Abbildung 3-2: Skizze der Plattenapparatur LOLA V zur Messung der stationären Wärmeleitfähigkeit. Komplette VIPs mit Folienumhüllung wurden vermessen.

Wenn der stationäre Zustand erreicht ist, dann kann die Wärmeleitfähigkeit für eine Probe der Dicke D entsprechend dem Fourierschen Gesetz ermittelt werden. Bei der Einplattenapparatur ist der Wärmestrom Q durch die Probe gleich der Heizleistung P der zentralen Platten. Somit ergibt sich die Wärmeleitfähigkeit λ zu (Λ ist der Wärmedurchlasskoeffizient)

$$\lambda = \Lambda \cdot D = \frac{Q \cdot D}{A \cdot (T_w - T_k)} = \frac{P \cdot D}{A \cdot (T_w - T_k)}. \quad (3-1)$$

Bei den Untersuchungen soll vor allem die Zunahme der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit vom Wassergehalt bei gleichen Messbedingungen ($T_w = 20 \text{ °C}$ und $T_k = 0 \text{ °C}$) untersucht werden. Betrachtet man nur die Änderung der Wärmeleitfä-

higkeit aufgrund von Gasdruck- oder Feuchtevariationen bei sonst gleichen Bedingungen, dann können systematische Fehler vernachlässigt werden. Für die statistische Fehlerabschätzung genügt die Kenntnis der Reproduzierbarkeit der Messapparatur bezüglich der Messung des Wärmedurchlasskoeffizienten Λ und die Genauigkeit bei der Dickenmessung. Die Reproduzierbarkeit der Messapparatur LOLA V bei den vorgegebenen Messbedingungen beträgt etwa 2,0 %. Die Unsicherheit der Dickenmessung liegt etwa bei $\pm 0,5$ mm, d.h. bei 20 mm dicken VIPs bei 2,5 %. Insgesamt ergibt sich ein statistischer Fehler von ungefähr 3,0 %.

Um den absoluten Fehler bei der Messung der Wärmeleitfähigkeit bestimmen zu können, müssten die Fehler bei der Messung der Temperaturen T_w und T_k , der Heizleistung P , der Paneeldicke D und Messfläche A bekannt sein bzw. abgeschätzt werden. Falls eine Temperaturverstellung zwischen Heizplatte und Schutzring auftritt, kann Wärme lateral abfließen, was zu einer Abweichung der Heizleistung P von der tatsächlich durch die Probe fließenden Wärme Q führt. Dieser Fehler kann mit einem messtechnischen Korrekturverfahren korrigiert werden, bei dem die Temperaturdifferenz $\Delta T = T_w - T_k$ bei festgehaltener Mitteltemperatur $T_m = (T_w + T_k)/2$ variiert wird [Het1988]. Der absolute Fehler der Messapparatur LOLA V liegt bei etwa 5 %.

3.3. Programm zur Bestimmung der Durchlässigkeiten von VIPs

Für die Untersuchungen der Durchlässigkeit der Umhüllung wurden Paneele mit drei verschiedenen Folien verwendet, eine Aluminiumverbundfolie (AF) und zwei metallbedampfte Hochbarrierefolien (MF1 und MF2)⁸. Die Messung der Durchlässigkeiten erfolgte ausschließlich an VIPs mit pyrogener Kieselsäure als Kernmaterial. Die Durchlässigkeit für Luftgase wurde durch wiederholte Messung des Paneelinnendrucks mit dem Folienabhebeverfahren ermittelt. Die Dampfdurchlässigkeit wurde über die Massenzunahme durch wiederholte Wägung bestimmt.

Um den Einfluss von Temperatur und Feuchte zu bestimmen, wurden 6 Klimaboxen mit temperatureregelter Heizung gefertigt. Es wurden drei Temperaturen (25 °C, 45 °C und 65 °C) eingestellt, wobei in drei Boxen eine rel. Feuchte von 75 % eingestellt wurde, während in den anderen drei Boxen der gleiche, unregelmäßige Partialdruck entsprechend der Umgebungsluft vorlag. Eine gleichmäßige Temperatur und Feuchte wurde durch Umwälzung mit einem Ventilator gewährleistet. Die Abmessungen der Paneele in den Boxen betragen 20 x 20 x 1 cm³. In jede Box wurden drei VIPs mit der Folie AF, drei VIPs mit der Folie MF2 und ein VIP mit der Folie MF1 eingebracht. Um einen möglichen Einfluss der Paneelgröße feststellen zu können, wurden zusätzlich VIPs mit den Abmessungen 10 x 10 x 1 cm³ gefertigt und untersucht (ein VIP je Folie AF, MF1 und MF2). Insgesamt wurden 60 Paneele regelmäßig in einem Gesamtzeitraum von annähernd einem Jahr vermessen. Die Messbedingungen in den Klimaboxen sind in Tabelle 3-1 zusammengestellt.

⁸ Folie AF: Climapac-2810 / Flöter Verpackungsservice GmbH, Folie MF1: EK22 / Wolff Walsrode, Folie MF2: Mylar® 350SBL300 / Dupont Teijin Films.

Tabelle 3-1: Temperatur, rel. Luftfeuchte und Partialdruck in den Boxen.

Boxennummer	1	2	3	4	5	6
Temperatur [°C]	25	45	65	25	45	65
Rel. Feuchte [%]	ca. 45	ca. 11	ca. 4	75	75	75
H ₂ O-Partialdruck [mbar]	ca. 14	ca. 14	ca. 14	24	73	187

Die möglichen Paneelformate waren durch die Größe der Klimaboxen eingeschränkt. Um den Einfluss der Paneelgröße besser erfassen zu können, wurden zusätzlich VIPs mit drei verschiedene Größen 10 x 10 cm³, 20 x 20 cm³ und 40 x 40 cm³ in Klimakammern gelagert und vermessen. Je Folientyp (AF, MF1 und MF2) und je Paneelgröße wurden drei Paneele gefertigt. Die VIPs wurden in Klimakammern bei 23 °C / 75 % und bei 23 °C / 15 % gelagert. Mit diesen zwei Feuchtebedingungen sollte der Einfluss der Feuchte genauer bestimmt werden. Je Klimabedingung wurden 27 VIPs, d.h. insgesamt 54 VIPs in den Klimakammern, vermessen. Tabelle 3-2 veranschaulicht die Klimabedingungen in den Klimakammern.

Tabelle 3-2: Temperatur, rel. Luftfeuchte und Partialdruck in den Klimakammern.

Klimakammer	1	2
Temperatur [°C]	23	23
Rel. Feuchte [%]	75	15
H ₂ O-Partialdruck [mbar]	21	4,2

In Tabelle 3-3 sind die Foliendurchlässigkeiten gemäß Herstellerangabe für die untersuchten Folien angegeben.

Tabelle 3-3: Foliendurchlässigkeit und Folienaufbau gemäß Herstellerangabe für die untersuchten Folien. PE-LD (LowDensity) ist die siegelfähige Innenschicht. PET oder PP wird für die Außenschicht verwendet (met = metallbedampft).

Folie	Folienaufbau	$Q_{O_2,F}$	$Q'_{H_2O,F}$
		[cm ³ (STP)/(m ² d·bar)]	[g/(m ² ·d)]
AF ⁹	12 µm PET / 8 µm Alu / 100 µm PE-LD	< 0,0005 (25 °C / 50 % r.F.)	< 0,005 (20 °C / 50 % r.F.)
MF1	15 µm PPmet / 12 µm metPET / 50 µm PE-LD	0,07 ¹⁰ (23 °C / 50 % r.F.)	0,1 (38 °C / 90 % r.F.)
MF2	20 µm PETmet / 20 µm metPET / 25 µm PE-LD	0,00062 (23 °C / 75 % r.F.)	0,005 (23 °C / 75 % r.F.)

⁹ Bei Aluminiumverbundfolien sind die Durchlässigkeiten in der Regel niedriger als die Grenzwerte der genormten Messverfahren. Die hier angegebenen Werte sind Grenzwerte der Messverfahren nach amerikanischem Standard (ASTM F1249-30 bzw. ASTM D3985-81).

¹⁰ Nach Herstellerinformation weisen die Durchlässigkeiten bei der preiswert gefertigten Folie MF1 hohe Schwankungen auf. Die angegebenen Durchlässigkeiten stellen obere Grenzwerte dar, wobei der tatsächliche Durchlässigkeitswert um ein Mehrfaches niedriger sein kann. Werte um 0,02 cm³(STP)/(m²d·bar) und sogar weniger wurden bei diesem Folientyp gemessen [Jac2003].

Mit der Folie MF2 wurde eine metallisierte Folie verwendet, die im Vergleich mit anderen metallisierten Folien sehr niedrige Durchlässigkeiten aufweist. Mit der Folie MF2 wurde eine preiswerte metallisierte Folie verwendet. Zum Vergleich wurde eine Aluminiumverbundfolie verwendet, die aufgrund der 8 µm dicken Aluminiumschicht die niedrigsten Durchlässigkeiten hat.

3.4. Präparation feuchter VIPs

Zur Messung der Wärmeleitfähigkeit eines VIPs im Abhängigkeit von der Feuchte wird zuerst ein Verfahren benötigt, mit dem sich Feuchte gezielt in ein VIP einbringen lässt. Mit folgender Vorgehensweise wird ein definierter Wassergehalt im VIP eingestellt:

- Zuerst wird das Kernmaterial (zu Platten gepresste pyrogene Kieselsäure) bei 150 °C für 3 h getrocknet. Nach dem Trocknen wird das Material in einen dampfdichten Beutel eingepackt, damit es auskühlen kann, ohne Feuchte aus der Umgebung aufzunehmen. Danach wird die trockene Platte auf die Waage gelegt, die Trockenmasse bestimmt und die Platte solange mit Wasser besprüht bis ein vorgegebener Wassergehalt erreicht ist (aus Trockenmasse und dem gewünschten Wassergehalt $X_{w,m}$ ergibt sich die zu besprühende Wassermenge). Die feuchte Platte wird anschließend in einen dampfdichten Beutel verpackt und bei -30 °C gefrostet (> 12 h).
- Um aus der gefrosteten Platte ein VIP herzustellen, wird die Platte in eine vorbereitete VIP-Umhüllung gesteckt, in der Vakuumkammer innerhalb von 10 Minuten evakuiert und versiegelt. Die Platte wurde gefrostet, damit während des Evakuierens möglichst wenig Wasserdampf aus dem Kernmaterial abgesaugt wird (bei -30 °C ist der Sattdampfdruck kleiner 1 mbar). An den auf diese Weise befeuchteten VIPs wurden die Wärmeleitfähigkeitsmessungen durchgeführt.
- Während des Evakuierens wird trotz des Frostens Feuchte aus dem VIP abgesaugt, so dass der zuvor eingestellte Wassergehalt sich beim Evakuieren vermindert. Um den tatsächlich während der Messung im VIP vorhandenen Wassergehalt zu ermitteln, werden die VIPs nach den Wärmeleitfähigkeitsmessungen geöffnet und das befeuchtete Kernmaterial gewogen. Der Kern wird erneut bei 150 °C für 3 h getrocknet und die Trockenmasse, wie oben beschrieben, bestimmt. Aus der Trockenmasse m_{trocken} und der Masse des befeuchteten Kerns m_{feucht} lässt sich der tatsächliche Wassergehalt X_W ($X_W = (m_{\text{feucht}} - m_{\text{trocken}}) / m_{\text{trocken}}$) im VIP ermitteln. Der Wassergehalt lässt sich nach dem vorgegeben Verfahren auf ca. 0,3 M-% genau bestimmen.

Entsprechend dem Probenpräparationsverfahren wird die Feuchte im VIP als Wassergehalt $X_{w,m}$ (in Massenprozent bezogen auf die Trockenmasse) angegeben.

4 Messungen und Diskussion

4.1. Wärmeleitfähigkeitsmessungen

4.1.1. Messergebnisse der Wärmeleitfähigkeitsmessungen

4.1.1.1 Stationäre Wärmeleitfähigkeit in feuchten VIPs

Mit der Plattenapparatur LOLA V wurde an VIPs, die zuvor mit einem definierten Wassergehalt gefertigt wurden, die Heizleistung Q_{el} gemessen, die nach Aufprägen einer Temperaturdifferenz von $0\text{ °C} / 20\text{ °C}$ von der warmen Seite in das VIP fließt. Die Messung wurde solange durchgeführt, bis ein stationärer Zustand erreicht war. In diesem stationären Zustand wurde die Wärmeleitfähigkeit nach Gleichung (2-2) berechnet. Anhand von Modellrechnungen in Kapitel 2.3.5 wurde gezeigt, dass in diesem stationären Zustand der Wassergehalt ungleichmäßig im VIP verteilt und somit die Wärmeleitfähigkeit ortsabhängig ist. Die gemessene Wärmeleitfähigkeit ist folglich eine über die Probendicke gemittelte Wärmeleitfähigkeit (s. Gleichung (2-22)). Abbildung 4-1 zeigt die gemessenen Wärmeleitfähigkeiten in Abhängigkeit vom Wassergehalt. Die Messungen wurden an 2 cm dicken Proben bei einer Mitteltemperatur von 10 °C durchgeführt ($0\text{ °C} / 20\text{ °C}$). Alle Messergebnisse beziehen sich auf diese Mitteltemperatur bzw. auf dieses Temperaturintervall.

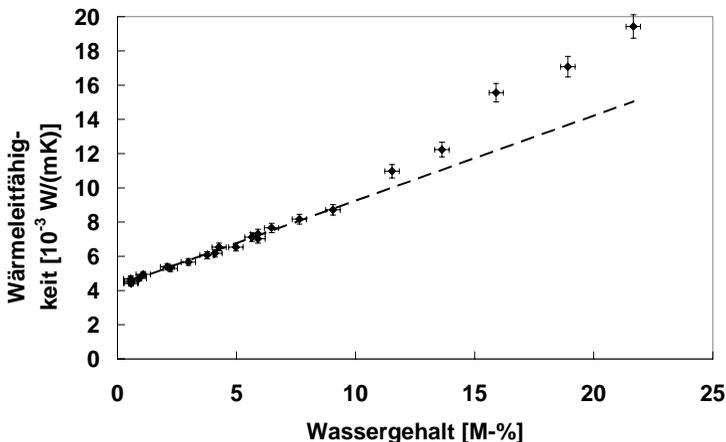


Abbildung 4-1: Wärmeleitfähigkeit von 2 cm dicken VIPs aus pyrogener Kieselsäure in Abhängigkeit vom Wassergehalt $X_{w,m}$ bei einer Mitteltemperatur von 10 °C ($0\text{ °C} / 20\text{ °C}$) [Rei2003]. (mit Fit-Gerade über die Messwerte bis 10 M-%).

In Abbildung 4-1 ist eine deutliche Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vom Wassergehalt zu erkennen. Mit zunehmendem Wassergehalt ist zunächst ein annähernd linearer Anstieg festzustellen, der bei ca. 8 M-% in etwa eine Verdoppelung der Wärmeleitfähigkeit gegenüber dem wasserfreien Zustand zur Folge hat. Bei höheren Wassergehalten nimmt die Wärmeleitfähigkeit stärker zu. Um diesen Sachverhalt zu quantifizieren, wurde eine Fit-Gerade über alle Messpunkte unterhalb eines Wassergehalts von 10 M-% eingezeichnet (mit der Steigung $\Delta\lambda/\Delta x_{w,m} = 0,5 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{M}\text{-}\%)$). Messungen bei hohen Wassergehalten sind mit Vorsicht zu bewerten. So scheint sich bei hohen Wassergehalten ($> 15 \text{ M}\text{-}\%$) die Struktur der gepressten Pulverplatten durch das Wasser zu verändern. Dies ist an kleinen Mulden in der Oberfläche zu erkennen, in denen das Pulver vom äußeren Druck verdichtet wird. Allerdings sind diese Messwerte für Anwendungen nicht bedeutend, da in der Praxis kaum Wassergehalte über 6 M-% auftreten.

Die Wärmeleitfähigkeit feuchter VIPs hängt nicht nur vom Wassergehalt, sondern auch vom Dampfdruck in den Poren ab. Um den Druck im VIP abschätzen zu können, wurde der VIP-Innendruck unmittelbar nach der Wärmeleitfähigkeitsmessung mit dem Folienabhebeverfahren gemessen. Abbildung 4-2 zeigt den Gesamtdruck, der nach den Wärmeleitfähigkeitsmessungen an den feuchten VIPs mit verschiedenen Wassergehalten gemessen wurde.

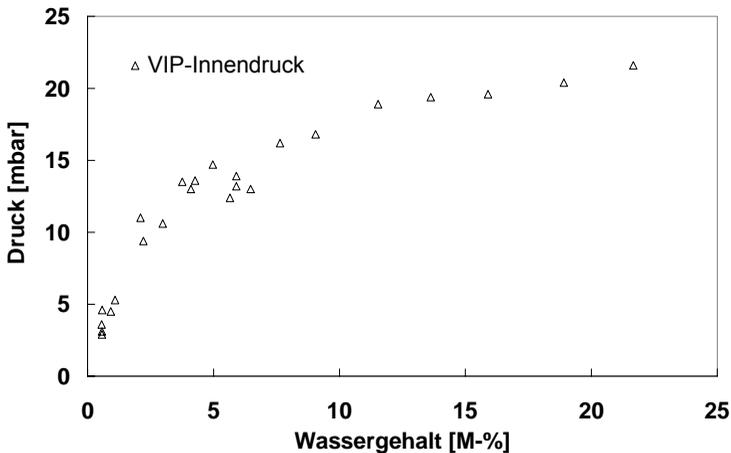


Abbildung 4-2: VIP-Innendruck in Abhängigkeit vom Wassergehalt, gemessen mit dem Folienabhebeverfahren, unmittelbar ($< 1 \text{ min}$) nach der Wärmeleitfähigkeitsmessung ($0 \text{ }^\circ\text{C}$ an kalter Platte)[Rei2003]. Gemessen wird der Gesamtdruck, der sich aus Wasserdampf- und Luftdruck zusammensetzen kann.

Bei den Druckwerten ist für $X_{w,m} < 5 \text{ M}\text{-}\%$ ein deutlicher Anstieg mit dem Wassergehalt festzustellen. Bei hohen Wassergehalten steigt der Druck nicht wesentlich über 20 mbar. Die Schwankung sind durch das Messverfahren bedingt. Nach der Entnahme der Probe aus der Plattenapparatur kann sich die $0 \text{ }^\circ\text{C}$ kalte Seite des VIPs während der Messung des VIP-Drucks (Messdauer $< 1 \text{ Minute}$) etwas er-

wärmen, was zu einem Anstieg des Drucks von einigen mbar führen kann. Die Druckwerte geben somit eine obere Abschätzung für den VIP-Innendruck an. Die bei hohen Wassergehalten relativ hohen Druckwerte bis zu 20 mbar sind zumindest zum Teil auf diesen Temperatureinfluss bei der Messung zurückzuführen (im stationären Zustand muss bei 0 °C der Dampfpartialdruck kleiner als der Sattendampfdruck von 6,1 mbar sein, der Druck wurde nach Erreichen des stationären Zustandes gemessen). Möglicherweise sind die hohen Druckmesswerte auch auf einen Luftpartialdruck im VIP zurückzuführen. Wenn befeuchtete VIPs evakuiert werden, lässt sich der Druck in der Vakuumkammer, bedingt durch Verdampfen des im VIP gebundenen Wassers, nicht so weit absenken wie beim Evakuieren trockener VIPs. Auch wurde nur 10 min evakuiert, um nicht zu viel Wasser aus dem VIP abzusaugen. Aus diesem Grund kann neben dem Wasserdampf Restluft im VIP vorhanden sein. Welcher Druckanteil dabei auf Luft und Wasserdampf zurückzuführen ist, kann aus den Messungen nicht ermittelt werden. Dieser Aspekt ist bei der Diskussion der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von Wassergehalt und Druck zu berücksichtigen.

Die Messungen der Wärmeleitfähigkeit wurden an Proben unterschiedlicher Rohdichte durchgeführt. Die Rohdichte der Platten lag zwischen 158 und 172 kg/m³. An einigen trockenen VIPs wurde die Wärmeleitfähigkeit gemessen. Alle Messwerte lagen zwischen (3,8 und 4,1) · 10⁻³ W/(mK). Im Vergleich mit der Feuchte ist der Einfluss der Rohdichte bei den hier verwendeten Proben gering.

4.1.1.2 Instationärer Wärmetransport im VIP

In Abbildung 4-3 ist die Wärmestromdichte q pro Temperaturdifferenz dargestellt, die unmittelbar nach dem Einbringen von VIPs (mit unterschiedlichen Wassergehalten und gleichmäßiger Temperatur von ~20 °C) in die Messapparatur LOLA V von der 20 °C warmen Heizplatte zur 0 °C kalten Seite fließt.

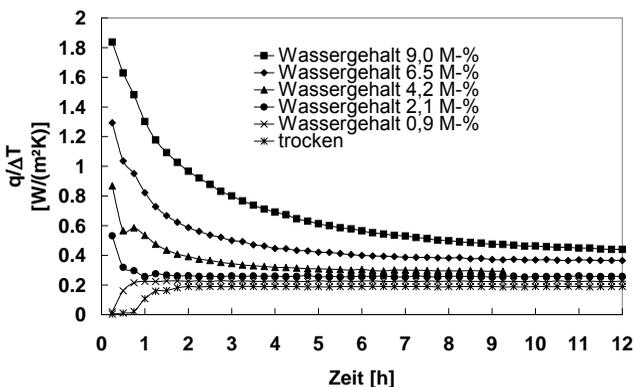


Abbildung 4-3: Wärmestromdichte pro Temperaturdifferenz, die von der 20 °C warmen Heizplatte zur 0 °C kalten Seite fließt; gemessen an VIPs mit unterschiedlichen Wassergehalten.

Der zeitliche Verlauf des Wärmeflusses weist eine deutliche Abhängigkeit vom Wassergehalt auf. Bei trockenen VIPs und VIPs mit geringem Wassergehalt (< 1 M-%) steigt der Wärmefluss innerhalb der ersten Stunde von 0 W auf den stationären Endwert von ca. 4 W/m² an. Der Wärmefluss steigt erst an, wenn die Temperaturänderung, hervorgerufen durch Kontakt mit der 0 °C kalten Platte, bis zur warmen Seite durchgedrungen ist. Mit zunehmendem Wassergehalt steigt relativ bald nach Beginn der Messung der Wärmefluss auf der warmen Seite an. Unmittelbar nachdem VIPs in die Plattenapparatur eingebracht werden und 0° C am VIP anliegen, sinkt an der kalten Seite sogleich der Dampfdruck, so dass der sich einstellende Druckgradient unmittelbar zu einem Dampf- bzw. zu einem Enthalpietransport mit erhöhtem Wärmefluss führt. Durch die fortdauernde Feuchteumlagerung reduziert sich der Druckgradient im Lauf der Zeit, der Wärmefluss nimmt ab und erreicht schließlich einen vom Wassergehalt abhängigen stationären Wert. Aus diesen stationären Endwerten des Wärmeflusses lassen sich die im vorigen Kapitel gezeigten Wärmeleitfähigkeiten ableiten. Je nach Wassergehalt sind zur Erreichung des stationären Zustands Wartezeiten von wenigen Stunden bis zu 12 Stunden und mehr (bei Wassergehalten > 10 M-%) erforderlich. Die Messkurven zeigen anschaulich, wie lange man warten muss, um stationäre Bedingungen, d.h. ohne Latentwärmetransport durch Feuchteumlagerung, zu erreichen. Bei transienten Verfahren oder wenn nicht ausreichend lange gewartet wird, können Messungen deutlich erhöhte Wärmeleitfähigkeiten vortäuschen, da in diesen Fällen ein Latentwärmetransport durch Feuchteumlagerung mitgemessen wird.

4.1.2. Diskussion der Wärmeleitfähigkeitsmessungen

4.1.2.1 Diskussion der stationären Messungen

Bei der Darstellung der Messungen der Wärmeleitfähigkeit feuchter VIPs unter stationären Bedingungen in Abbildung 4-1 wurde die Wärmeleitfähigkeit über den Wassergehalt, der bei der Herstellung der VIPS eingebracht wurde, aufgetragen. Entsprechend den theoretischen Überlegungen wird der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit feuchter VIPs verursacht durch den Dampfdruck im VIP und durch adsorbiertes Wasser. Wie im Kapitel 2.2.3 beschrieben, wird sich Wasser bei niedrigen Luftfeuchten zuerst an der Oberfläche der Pulverkörner und möglicherweise in Zwickeln anlagern (Reduzierung thermischer Kontaktwiderstände zwischen Pulverkörnern). Mit zunehmender Luftfeuchte kann Kapillarkondensation in den Poren stattfinden. Bei welchen Wassergehalten welcher Effekt zum Wärmeleitfähigkeitsanstieg beiträgt, lässt sich kaum abschätzen, da dazu die Kenntnis der Porenstruktur und die Art der Kontaktwiderstände zwischen Pulverkörnern bekannt sein müsste. Außerdem ist der Wassergehalt im stationären Zustand ungleichmäßig im VIP verteilt, so dass die Effekte sich überlagern können (s. Abbildung 2-11). So kann z.B. an der kalten, feuchteren Seite bereits Kapillarkondensation einsetzen, während auf der warmen Seite einfache Adsorption oder Zwickel effekte möglich sind. Zusätzlich zum Einfluss des angelagerten Wassers auf die Wärmeleitfähigkeit kann noch die Kopplung von Flüssig- und Dampftransport nach dem Heat-Pipe-Effekt zum Anstieg des Wärmeflusses in der Probe beitragen.

Die bisherigen Erläuterungen veranschaulichen, wie komplex die Wechselwirkungen zwischen Feuchte und Wärmetransport sind. Auch wenn einzelne Mechanismen wie Kapillarkondensation und Heat-Pipe-Effekt vermutlich erst mit steigenden Wassergehalten ihre Wirkung entfalten, so ist eine Separierung der einzelnen Transportmechanismen auf Basis der hier vorliegenden Messung nicht möglich. Bei den Messungen ist lediglich der mittlere Wassergehalt im VIP und ein oberer Wert für den VIP-Innendruck bekannt. Auch ist nicht bekannt, ob der VIP-Innendruck nur vom Wasserdampf verursacht wird, oder welcher Anteil auf Luftgase zurückzuführen ist. Deswegen lassen sich nur obere und untere Abschätzungen für den Einfluss der Gaswärmeleitfähigkeit und für den Einfluss des gebundenen Wassers auf die Wärmeleitfähigkeit ableiten. In dem relevanten Druckbereich bis 20 mbar hat der Wasserdampf bei gleichem Druck eine etwas höhere Gaswärmeleitfähigkeit als die Luft. Bei 10 mbar hat Luft in VIPs aus pyrogener Kieselsäure eine theoretisch abgeschätzte Gaswärmeleitfähigkeit von $0,41 \cdot 10^{-3}$ W/(mK); bei Wasserdampf beträgt sie $0,64 \cdot 10^{-3}$ W/(mK) (s. Abbildung 2-1). Nimmt man vereinfachend an, dass der gesamte gemessene Druck vom Wasserdampf verursacht wird, dann erhält man eine obere Abschätzung für die Gaswärmeleitfähigkeit und aus der Differenz von gemessener Wärmeleitfähigkeit und abgeschätzter Gaswärmeleitfähigkeit erhält man eine untere Abschätzung für die Wärmeleitfähigkeit, die durch das gebundene Wasser verursacht wird.

Abbildung 4-4 zeigt die gemessene Wärmeleitfähigkeit und die nach der hier beschriebenen Weise rechnerisch abgeschätzte Gaswärmeleitfähigkeit. Zusätzlich ist die Differenz aus beiden Größen eingezeichnet, die eine untere Abschätzung für die Wärmeleitfähigkeit des gebundenen Wassers ermöglicht. Die Gaswärmeleitung für Dampf wurde nach Gleichung (2-7) berechnet mit $\lambda_{D, \text{frei}} = 17 \cdot 10^{-3}$ W/(mK) und mit $p_{D, 1/2} = 240$ mbar.

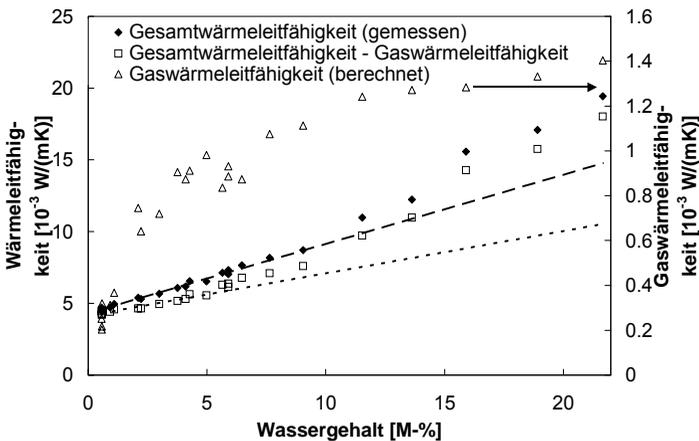


Abbildung 4-4: gemessene Wärmeleitfähigkeit λ_{VIP} feuchter VIPs, aus Druck abgeschätzte Gaswärmeleitfähigkeit λ_{Gas} und deren Differenz ($\lambda_{VIP} - \lambda_{Gas}$).

Die Gaswärmeleitfähigkeit steigt bei wenigen Massenprozent Wassergehalt deutlich an und erreicht, wie der Druck, ab ca. 10 M-% eine Sättigung. Die Gaswärmeleitfähigkeit trägt maximal $1,4 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ zur Gesamtwärmeleitfähigkeit bei. Die Differenz Gesamtwärmeleitfähigkeit minus Gaswärmeleitfähigkeit lässt sich als zusätzliche Wärmeleitfähigkeit durch das gebundene Wasser interpretieren. Dieser Einfluss von Wasser auf die Wärmeleitfähigkeit ist vor allem bei hohen Wassergehalten deutlich stärker ausgeprägt. Bis ca. 5 M-% ist ein annähernd linearer Anstieg festzustellen, ab 5 M-% und noch mehr ab 10 M-% steigt die wassergetriebene Wärmeleitfähigkeit stärker an. Dieser starke Anstieg bei hohen Wassergehalten kann durch verstärkte Kapillarkondensation oder durch den Heat-Pipe-Effekt hervorgerufen werden.

Bis zu Wassergehalten von 5 M-% ist der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit annähernd linear, wie die Fit-Geraden (Fit bis zu Werten von 5 M-%) in Abbildung 4-4 zeigen. Die beiden Fit-Geraden weisen eine Steigung von $a_m = 0,29 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{M}\cdot\text{\%)}$, bzw. von $a_m = 0,48 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{M}\cdot\text{\%)}$, als unteren und oberen Grenzwert auf. Der obere Grenzwert beinhaltet den Einfluss der Gaswärmeleitfähigkeit durch den Wasserdampf.

Die Größe a_m ist der massebezogene Feuchtezuschlagskoeffizient. Der aus den Wert $a_m = 0,29 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{M}\cdot\text{\%)}$ berechnete volumenbezogene Feuchtezuschlagskoeffizient a_v beträgt $1,8 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{Vol}\cdot\text{\%)}$ und lässt sich mit den Koeffizienten anderer Materialien in Tabelle 2-2 vergleichen. Mit $a_v = 1,8 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{Vol}\cdot\text{\%)}$ ist, absolut gesehen, der Einfluss des gebundenen Wassers auf die Wärmeleitfähigkeit von VIPs aus pyrogener Kieselsäure in der gleichen Größenordnung wie bei anderen Materialien ($a_v \approx (1 - 10) \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot\text{Vol}\cdot\text{\%)}$). Da die Wärmeleitfähigkeit der VIPs sehr niedrig ist, ist der relative Einfluss dagegen sehr groß. Bereits bei 10 M-% bzw. 1,6 Vol-% (ρ_{VIP} sei 160 kg/m^3) hat sich die Wärmeleitfähigkeit mehr als verdoppelt im Vergleich zur Trockenwärmeleitfähigkeit.

Die Zunahme des Wassergehalts entspricht einer Massenzunahme und lässt sich äquivalent als Rohdichteerhöhung $\Delta\rho_{\text{äquiv}}$ beschreiben mit $\Delta\rho_{\text{äquiv}} = \Delta w = \Delta X_{w,m} \cdot \rho_{\text{trocken}}$. Mit dieser äquivalenten Rohdichteerhöhung lässt sich ein feuchtebedingter Anstieg der Wärmeleitfähigkeit pro äquivalenter Rohdichtezunahme $\Delta\lambda/\Delta\rho_{\text{äquiv}} = \Delta\lambda/(\Delta X_{w,m} \cdot \rho_{\text{trocken}})$ berechnen. Interessant ist es, diesen Wert $\Delta\lambda/\Delta\rho_{\text{äquiv}}$ mit dem Anstieg der Wärmeleitfähigkeit $\Delta\lambda/\Delta\rho$ pro Materialrohddichte zu vergleichen. Eine äquivalente Rohdichteänderung um $\Delta\rho_{\text{äquiv}} = \Delta w = 10 \text{ kg/m}^3$ entspricht, bei einer Rohddichte von 160 kg/m^3 , einem Wassergehaltsanstieg von 6,25 M-% und ergibt eine feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitszunahme um $\Delta\lambda = 1,8 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ und ein $\Delta\lambda/\Delta\rho_{\text{äquiv}}$ von $18 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot 100 \text{ kg/m}^3)$. Dieser Wert ist etwa um eine Größenordnung höher als $\Delta\lambda/\Delta\rho$ (ca. $2,5 \cdot 10^{-3} \text{ W/(m}\cdot\text{K}\cdot 100 \text{ kg/m}^3)$, s. Kapitel 2.1.4). Würde sich Wasser gleichmäßig an die Oberfläche anlagern, dann könnte man erwarten, dass $\Delta\lambda/\Delta\rho_{\text{äquiv}}$ und $\Delta\lambda/\Delta\rho$ in der gleichen Größenordnung liegen (Wasser hat eine etwas kleinere Wärmeleitfähigkeit hat als Glas ($\lambda_{\text{wasser}} = 0,60 \text{ W/(mK)}$ und $\lambda_{\text{glas}} = 0,80 \text{ W/(mK)}$ [Cam1995]). Bei Wasser scheinen verstärkende Effekte für den Anstieg der feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeit verantwortlich zu

sein. Mögliche Ursachen sind Zwickel-effekte (erhöhte Wasseranlagerung an thermischen Kontaktwiderständen), Kapillar- und Heat-Pipe-Effekte.

Um festzustellen welche Mechanismen tatsächlich zum Anstieg der Wärmeleitfähigkeit beitragen, wären weitere umfangreiche Untersuchungen erforderlich. Zusätzlich zur Wärmeleitfähigkeitsmessungen wäre es wichtig, die Wassergehaltsverteilung und die Druckunterschiede (zwischen warmer und kalter Seite) im VIP zu messen. Auch durch Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen lassen sich möglicherweise Rückschlüsse zu den einzelnen Transportmechanismen ziehen. In [Har2004] wurden solche Wärmeleitfähigkeitsmessungen von feuchten VIPs bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Dabei zeigte sich ebenfalls ein deutlicher Feuchteeffluss. Die Messungen lassen sich aber nicht direkt mit den hier vorgestellten Messungen vergleichen. Zum einen wurden die Messungen nicht an VIPs mit Folienumhüllung durchgeführt, sondern an Platten aus pyrogener Kieselsäure in einer evakuierbaren Apparatur. Zum anderen wurde die Wärmeleitfähigkeit bei einem bestimmten Dampfdruck gemessen, ohne dass der Wassergehalt bekannt war¹¹.

4.1.2.2 Diskussion instationäre Messungen

Im Kapitel 2.3.5.1 wurden bereits Simulationsrechnungen zum zeitlichen Verlauf des Wärmeflusses vorgestellt, der von einer 20 °C warmen Seite in ein VIP fließt, wenn die Probe zuvor eine konstante Temperatur von 20 °C aufweist und zu Beginn der Simulation eine Seite sprunghaft auf 0 °C temperiert wird. Die mit der Simulation berechneten Wärmeflüsse (s. Abbildung 2-10) zeigen einen ähnlichen zeitlichen Verlauf auf wie die Messungen in der Apparatur LOLA V, weisen aber niedrigere Wärmeflüsse auf. Bei diesen Simulationen wurde eine konstante feuchteunabhängige Wärmeleitfähigkeit von $4 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ angenommen. Ersetzt man diese konstante Wärmeleitfähigkeit durch die feuchteabhängige Wärmeleitfähigkeit nach Gleichung (2-21) und führt die Simulationsrechnungen erneut aus (die sonstigen für die Berechnung erforderlichen Parameter bleiben unverändert, s. Kapitel 2.3.5), dann erhält man für VIPs mit verschiedenen Wassergehalten die in Abbildung 4-5 gezeigten Wärmeflussdichten pro Temperaturdifferenz. Zum Vergleich ist die in der LOLA V gemessene Wärmeflussdichte, bezogen auf die Temperaturdifferenz, aufgetragen.

¹¹ Aus dem Dampfdruck und mittels der Sorptionsisotherme lässt sich ein Wassergehalt berechnen, der aufgrund der ungleichmäßigen Wassergehaltsverteilung und des Temperaturverlaufs nur als eine einfache Abschätzung anzusehen ist. Die Messungen wurden an Proben durchgeführt mit Wassergehalten von weniger als 4 M-%. Die in [Har2004] abgeschätzte Wärmeleitfähigkeitszunahme durch den Wassergehalt ist etwa ein Drittel niedriger als bei den hier gezeigten Messungen.

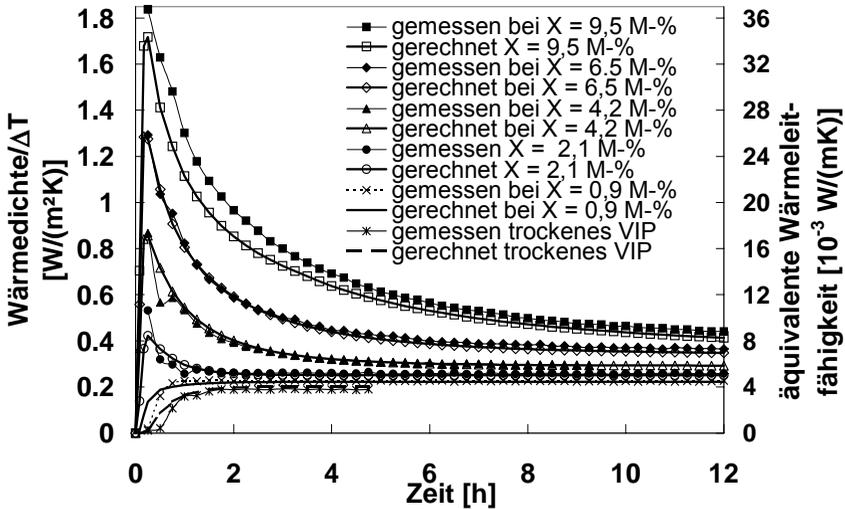


Abbildung 4-5: Berechnete und in LOLA V gemessene Wärmeflussdichte bezogen auf die anliegende Temperaturdifferenz, die von der 20 °C warmen Seite in VIPs fließt (bei 0 °C auf kalter Seite), die mit unterschiedlichen Wassergehalten gefertigt und vor der Messung auf ~ 20 °C temperiert wurden.

Die Simulationsrechnungen stimmen gut mit den Messungen überein. Abweichungen innerhalb der ersten Stunde sind auf regelungsbedingte Schwankung der Messapparatur zurückzuführen. Nur bei hohen Wassergehalten von annähernd 10 M-% ist eine systematische Abweichung zwischen Messung und Simulation festzustellen, deren Ursache nicht bekannt ist. Allerdings wird die Simulation bei hohen Wassergehalten ungenauer, da bei hohen Wassergehalten kein eindeutiger funktionaler Zusammenhang mit der relativen Feuchte vorhanden ist (Desorption und Adsorption). Auch hängt die Simulation von der Steigung $dw/d\varphi$ der Sorptionsisotherme ab, die bei hohen Wassergehalten sehr groß werden kann und nur näherungsweise aus der Adsorptionsisotherme abgeleitet wird. Möglicherweise war der Wassergehalt im VIP nicht gleichmäßig verteilt. Insgesamt ist die Übereinstimmung zwischen Messung und Simulation überraschend gut, insbesondere weil die Dampftransportkoeffizienten theoretisch abgeleitet wurden (Diffusionsleitkoeffizient $\delta_D = 2,9 \cdot 10^{-10} \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$ und Feuchteleitkoeffizient $K_\varphi \approx 0$). Eine genaue Bestimmung dieser Koeffizienten, v.a. von K_φ , ist sehr aufwändig und wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt. Im Anhang (Anhang A-2) werden Messungen vorgestellt, die zumindest eine Abschätzung der Feuchte-transportkoeffizienten erlauben.

4.1.3. Bewertung Wärmeleitfähigkeitsmessungen

Die stationären Messungen der Wärmeleitfähigkeit an feuchten VIPs haben gezeigt, wie stark die Wärmeleitfähigkeit von der Feuchte abhängt. Neben der Gaswärmeleitung durch den Wasserdampf erhöht das gebundene Wasser die Wärmeleitfähigkeit. Bis ca. 5 M-% nimmt die Wärmeleitfähigkeit linear mit dem Wassergehalt zu. Die Steigung beträgt dabei $0,29 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{M}\text{-}\%)$ bzw. $1,8 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{Vol}\text{-}\%)$ je masse- oder volumenbezogenem Wassergehalt. Absolut ist der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit durch gebundenes Wasser in der gleichen Größenordnung wie bei anderen Materialien. Relativ ist der Einfluss, bedingt durch die geringe Trockenwärmeleitfähigkeit der VIPs, wesentlich stärker.

Die instationären Messungen lassen einen zeitabhängigen Latentwärmehtransport erkennen, der mit zunehmendem Wassergehalt sehr groß werden kann (der Wärmefluss in das VIP erhöht sich um ein Mehrfaches) und über Stunden hinweg abnimmt, bis schließlich ein stationärer Zustand erreicht wird (bei 10 M-% > 12 h). Dieser Effekt ist bei der Messung der Wärmeleitfähigkeit zu beachten. Insbesondere mit transienten Verfahren würde man aufgrund des Latentwärmeflusses zu hohe Wärmeleitfähigkeiten messen.

Die genauen Ursachen für den Anstieg der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit vom Wassergehalt (Zwickel-effekt, Kapillar- oder Heat-Pipe-Effekt,...) wurden nicht untersucht. Auch der Temperatureinfluss wurde nicht ermittelt. Insofern stellen die Messungen hier nur erste Abschätzungen dar und geben Anhaltspunkte für weitere Untersuchungen. In dieser Arbeit wurde der Hauptschwerpunkt auf die Untersuchung der Luft- und Dampfdurchlässigkeit von VIP-Umhüllungen gerichtet. Nur wenn die eindringenden Mengen an Luft und Wasserdampf bekannt sind, kann der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit vom Gasdruck und Wassergehalt ermittelt werden.

4.2. Klimaeinfluss auf Druck- und Massenanstieg

4.2.1. Messergebnisse bei variablen Klimabedingungen

4.2.1.1 Druckanstiege bei variablen Klimabedingungen

Wie in Kapitel 3.3 erläutert, wurden bei 6 verschiedenen Klimabedingungen die Druck- und Massenzunahmen von VIPs mit drei verschiedenen Folienumhüllungen und für 2 Paneelgrößen untersucht. Abbildung 4-6 zeigt die Druckzunahme in der Klimabox 2 (45 °C / 14 mbar) für die VIPs mit Folien AF, MF1, MF2 und den Abmessungen $10 \times 10 \times 1 \text{ cm}^3$ und $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$. In Abbildung 4-6 ist ein linearer Druckanstieg mit der Zeit zu erkennen. Die Druckanstiege unterscheiden sich deutlich, abhängig von Folie und Paneelgröße.

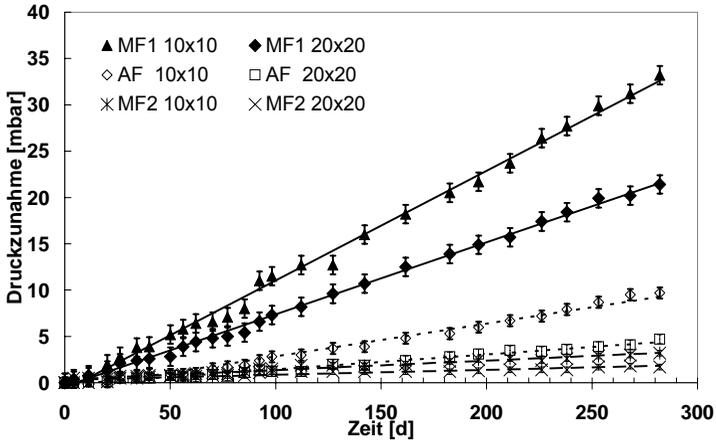


Abbildung 4-6: gemessene Druckzunahme mit der Zeit für VIPs mit den Paneelgrößen $10 \times 10 \times 1 \text{ cm}^3$ und $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$ und mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei $45 \text{ }^\circ\text{C}$ und 14 mbar Wasserdampfpartialdruck. Zusätzlich eingezeichnet sind die linearen Fit-Geraden.

Aus der Steigung der in Abbildung 4-6 eingezeichneten Geraden kann der mittlere Druckanstieg pro Jahr abgeleitet werden. Abbildung 4-7 zeigt für alle VIPs die aus der Steigung ermittelten Druckanstiegsraten (die zugehörigen Werte sind im Anhang Tabelle A-1 zusammengefasst).

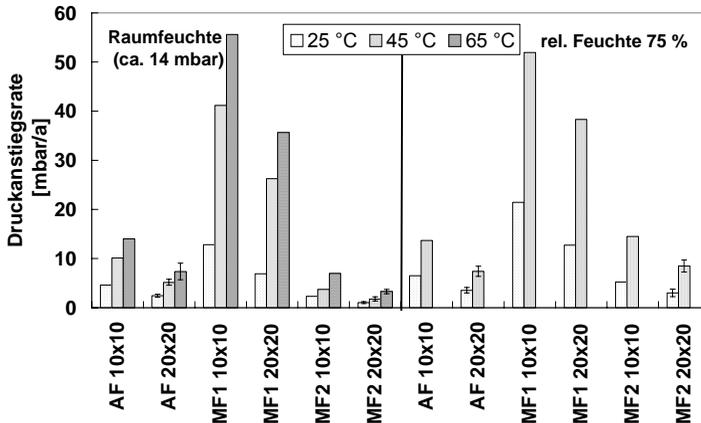


Abbildung 4-7: gemessene Druckanstiegsraten der VIPs mit den Hüllfolien AF, MF1 und MF2, gelagert in den Klimaboxen bei $25 \text{ }^\circ\text{C}$, $45 \text{ }^\circ\text{C}$ und $65 \text{ }^\circ\text{C}$ (bei den Folien AF und MF2 und der Größe $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$ sind Mittelwerte und Standardabweichung eingetragen). Für das Klima $65 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ } \%$ r.F. sind keine Werte angegeben, da die Mehrzahl der Paneele nach wenigen Monaten defekt war.

Die wichtigsten Zusammenhänge aus Abbildung 4-7 sind:

- VIPs mit unterschiedlichen Folien zeigen deutliche Unterschiede im Druckanstieg pro Jahr. Vor allem die Folie MF1 weist relativ hohe Druckanstiegsraten auf.
- Die Anstiege sind signifikant von der Temperatur abhängig.
- Bei höheren Luftfeuchten (75 % r.F.) sind erhöhte Druckanstiegsraten festzustellen.
- Mit Verdoppelung des Paneelumfangs L tritt annähernd eine Halbierung der Druckanstiegsrate auf. Dies weist darauf hin, dass bei den untersuchten Folien der Druckanstieg wesentlich von der Längendurchlässigkeit beeinflusst ist.

4.2.1.2 Massenzunahmen bei variablen Klimabedingungen

Abbildung 4-8 zeigt die Massenzunahme mit der Zeit von den VIPs in der Klimabox 3 (25 °C / 75 % r.F.), gefertigt mit den Folien AF, MF1 und MF2 und in den Paneelgrößen 20 x 20 x 1 cm³ und 10 x 10 x 1 cm³. Eine lineare Massenzunahme mit der Zeit und ein starker Einfluss der verwendeten Folien ist festzustellen. Bei den VIPs mit den Folien MF1 und MF2 zeigen die 20 x 20 x 1 cm³ großen Paneele Massenzunahmen, die annähernd dreimal höher sind als bei den 10 x 10 x 1 cm³ großen Paneelen. Bei VIPs mit Aluminiumverbundfolien sind die Massenzunahmen deutlich niedriger als bei metallisierten Folien.

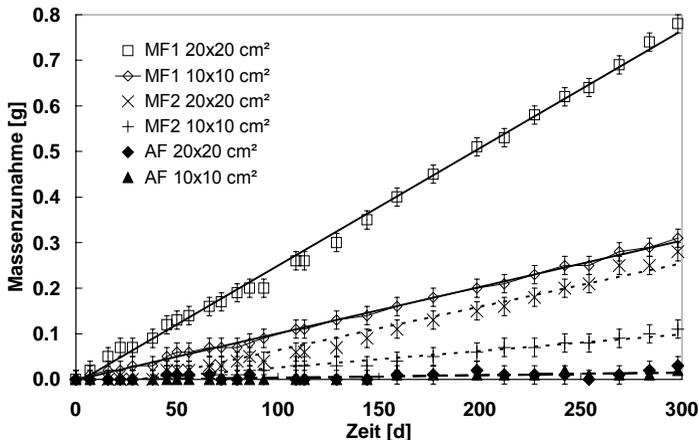


Abbildung 4-8: gemessene Massenzunahme mit der Zeit für VIPs mit den Paneelgrößen 10 x 10 cm² und 20 x 20 cm² und mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei 25 °C / 75 % r.F. Zusätzlich sind die Fit-Geraden abgebildet.

Die Steigung der in Abbildung 4-8 eingezeichneten Geraden ergibt die Massenzunahme pro Zeit und somit die Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit $Q'_{D,gesamt}$ der VIP-Umhüllung (s. Gleichung (2-45)). In Abbildung 4-9 sind die Werte dieser Ge-

samtwasserdampfdurchlässigkeit dividiert durch die Paneelfläche dargestellt (die zugehörigen Werte sind im Anhang Tabelle A-2 angegeben).

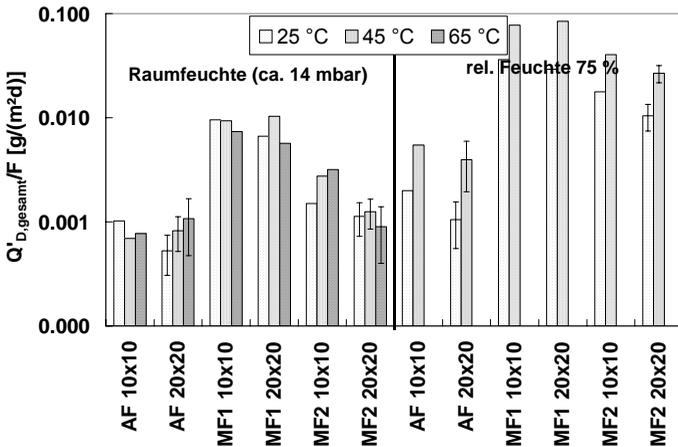


Abbildung 4-9: Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit pro Paneelfläche $Q'_{D,gesamt}/F$ ermittelt an den VIPs in den Klimaboxen (Paneele mit den Folien AF, MF1 und MF2 und in zwei Größen 10 x 10 cm² und 20 x 20) cm². Bei den Folien AF und MF2 und der Größe 20 x 20 cm² sind Mittelwerte und Standardabweichung eingetragen.

Die großen Unterschiede in der Dampfdurchlässigkeit bei Raumfeuchte und hohen Feuchten sind im Wesentlichen darauf zurückzuführen, dass bei erhöhten Feuchten, v.a. in Verbindung mit erhöhten Temperaturen, große Dampfdrücke an der VIP-Folie anliegen (s. Tabelle 3-1). Wasserdampfdurchlässigkeiten um 0,001 g/(m²d) wie sie bei der Folie AF und MF2 bei Raumfeuchte auftreten, führen zu Massenanstiegen von ca. 0,03 g pro Jahr bei 20 x 20 cm² großen VIPs, was im Bereich der Auflösung der Waage von 0,02 g liegt.

4.2.2. Diskussion des Klimaeinflusses

4.2.2.1 Einfluss der Feuchte auf den Druckanstieg

Bei allen bisherigen Druckanstiegsmessungen wurde immer der Gesamtdruck ermittelt (s. Abbildung 4-6 und Abbildung 4-7). Eindringender Wasserdampf wird von der pyrogenen Kieselsäure teilweise adsorptiv gebunden. Der sich einstellende Dampfdruck kann bei bekanntem Wassergehalt nach Gleichung (2-18) berechnet werden.

Das folgende Beispiel zeigt, wie stark der Druckanstieg vom eindringenden Wasserdampf beeinflusst werden kann. Dampfdurchlässigkeiten von 0,1 g/(m²d), wie sie z.B. an VIPs mit Folie MF1 bei 45 °C/ 75 r.F. gemessen wurden, führen zu einer Massenzunahme von ca. 4 M-%/a (gilt für VIPs mit $\rho = 170 \text{ kg/m}^3$). Bei einer

Temperatur von 20 °C ergibt sich ein aus der Sorptionsisotherme berechneter Dampfdruckanstieg von annähernd 12 mbar/a. Dampfdurchlässigkeiten von 0,001 g/(m²d), wie sie bei 25 °C und Raumfeuchte bei der Folie AF gemessen wurden, resultieren in einen feuchtebedingten Druckanstieg von etwa 0,1 mbar/a. Diese Abschätzungen zeigen, dass sich vor allem bei hohen Feuchten der gemessene Druckanstieg aus den Partialdrücken der trocknen Luftgase und dem Partialdruck von Wasserdampf zusammensetzt.

Abbildung 4-10 zeigt die Druckanstiegsraten gemessen an den 20 x 20 x 1 cm³ großen VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei vier unterschiedlichen Klimabedingungen (25 °C und 45 °C jeweils bei Raumfeuchte ~ 14 mbar und bei 75 % r.F.). Zusätzlich ist der Dampfdruckanstieg, der sich aus der Differenz der bei Raumfeuchte und bei 75 % r.F. gemessenen Massenzunahme nach Gleichung (2-18) berechnen lässt, abgebildet.

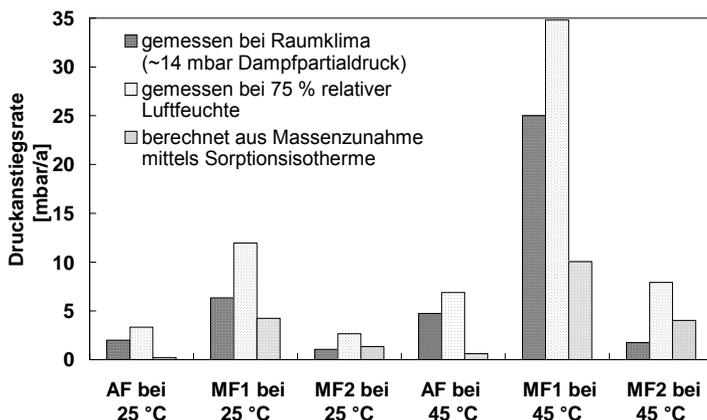


Abbildung 4-10: Vergleich der Druckanstiegsraten bei Raumfeuchte und bei 75 % r.F. mit den aus der Wassergehaltszunahme abgeschätzten Dampfdruckanstiegen für VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2.

Die Folie MF1 weist die größten Druckanstiegsraten auf, während VIPs mit den Folien AF und MF2 deutlich besser sind. Bei VIPs mit AF-Folie wird der Druckanstieg hauptsächlich von den trockenen Luftgasen verursacht, da der aus der Sorptionsisotherme abgeleitete Anteil des Dampfdruckanstiegs klein ist. Bei VIPs mit metallisierten Folien ist ein nicht zu vernachlässigender Anteil des Druckanstiegs auf den Wasserdampf zurückzuführen. Die im Vergleich zu AF-Folien hohen Wasserdampfdurchlässigkeiten für metallisierte Folien und der tendenziell flache Anstieg der Adsorptionsisotherme (s. Kapitel 2.2.2) führen dazu, dass der Dampfdruckanstieg durch eindringenden Wasserdampf im Vergleich zum Druckanstieg durch trockene Luftgase nicht vernachlässigt werden kann.

4.2.2.2 Einfluss der Temperatur auf die Luftdurchlässigkeit

Die Temperaturabhängigkeit der Foliendurchlässigkeit lässt sich gemäß Theorie durch einen Arrheniusansatz beschreiben (s. Kapitel 2.4.1). In Abbildung 4-7 ist der Einfluss der Temperatur auf den Druckanstieg gut zu erkennen. Allerdings wird der Druckanstieg, vor allem bei hohen Feuchten (75 % r.F.) und Temperaturen, zusätzlich vom eindringenden Wasserdampf beeinflusst. Bei Raumfeuchte ist dieser Einfluss geringer und die gemessene Temperaturabhängigkeit sollte bei Raumfeuchte näherungsweise der Temperaturabhängigkeit der Folienumhüllung entsprechen. Um möglichst genau die Temperaturabhängigkeit der Durchlässigkeit für die Luftgase zu erhalten, kann der Einfluss des eindringenden Wasserdampfes auf den Druckanstieg rechnerisch korrigiert werden (s. Gleichung (2-18)). In Abbildung 4-11 ist der Logarithmus der Durchlässigkeiten für Luftgase, v.a. N_2 und O_2 , bei 25 °C, 45 °C und 65 °C und bei Raumfeuchte über $\{-1/(RT)\}$ dargestellt. Die Durchlässigkeiten wurden gemäß Gleichung (2-18) aus den korrigierten Druckanstiegen errechnet. Ausgewertet wurden nur die Druckanstiege von Paneelen mit der Größe 20 x 20 x 1 cm³. Aus der Steigung der Geraden lassen sich die Aktivierungsenergien E_a , die in Tabelle 4-1 angegeben sind, ermitteln.

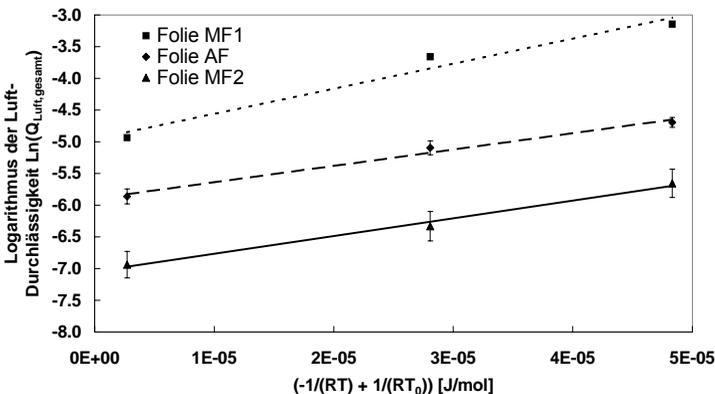


Abbildung 4-11: Logarithmus der Durchlässigkeit $Q_{Luft,gesamt}$ über $-1/(R \cdot T)$ für VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 (bei den Folie AF und MF1 sind Mittelwerte und Standardabweichung aus den Messungen an drei Paneelen abgebildet).

Tabelle 4-1: Aktivierungsenergien E_a für die Folien AF, MF1 und MF2.

Folie	AF	MF1	MF2
Aktivierungsenergie E_a [kJ/mol]	$25,5 \pm 5,2$	$39,7 \pm 11,2$	$27,9 \pm 4,7$

Die Aktivierungsenergien liegen für alle drei Folien in der für Kunststoffe zu erwartenden Größenordnung (20 bis 45 kJ/mol [Lan1998]). Um zu veranschaulichen wie stark die Temperatur die Luftdurchlässigkeit von Folien beeinflusst, ist in Tabelle 4-2 für typische Aktivierungsenergien von 25 und 40 kJ/mol der Faktor angegeben, um den sich die Durchlässigkeit im Vergleich zu der bei 25 °C gegebenen Durchlässigkeit ändert.

Tabelle 4-2: Faktor $\exp(-E_a/(RT)+E_a/(RT_0))$ bei Aktivierungsenergien von 25 und 40 kJ/mol mit $T_0 = 25\text{ }^\circ\text{C}$.

Temperatur	$E_a = 25$ [kJ/mol]	$E_a = 40$ [kJ/mol]
0 °C	0,40	0,23
10 °C	0,59	0,43
25 °C	1	1
45 °C	1,9	2,8
65 °C	3,3	6,7
80 °C	4,8	12,3

Hohe Aktivierungsenergien um 40 kJ/mol wie bei der Folie MF1 verursachen einen starken Temperatureinfluss. Durch Lagerung bei hohen Temperaturen (80 °C) lässt sich der Druckanstieg in etwa um einen Faktor 12 beschleunigen, bei niedrigen Temperaturen (0 °C) ist er nur noch annähernd ein Viertel so groß wie bei 25 °C. Im Einsatz wird somit der Druckanstieg wesentlich vom typischen Temperaturbereich der Anwendung (z.B. Kühlschrank oder Warmwasserspeicher) bestimmt. Bei Folien mit geringer Aktivierungsenergie (~ 25 – 30 kJ/mol bei Folie AF und MF) ist diese Temperaturabhängigkeit etwas reduziert.

4.2.2.3 Einfluss von Temperatur und relativer Feuchte auf die Wasserdampfdurchlässigkeit

Der wesentliche Einflussfaktor auf die Massenzunahme ist über der VIP-Folie herrschende Unterschied im Wasserdampfpartialdruck, der das treibende Potenzial für den Dampftransport ist. Der Dampfdruck variiert wegen Arrhenius exponentiell mit der Temperatur. Wie stark der Dampfdruck bei den untersuchten Klimabedingungen variiert, ist in Tabelle 3-1 angegeben. Zusätzlich zur Abhängigkeit vom anliegenden Dampfdruck kann die Dampfdurchlässigkeit explizit von Temperatur und relativer Feuchte abhängen. Um diese explizite Abhängigkeit der Dampfdurchlässigkeit von Temperatur und relativer Feuchte zu veranschaulichen, empfiehlt es sich, die Massenzunahme auf den Dampfdruck zu beziehen. Abbildung 4-12 zeigt die auf den Dampfdruck bezogene Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit pro VIP-Fläche $Q_{D,gesamt}/F$ für die Temperaturen 25 °C und 45 °C bei Raumfeuchte und bei 75 % relativer Feuchte.

Vor allem bei den metallisierten Folien ist zu erkennen, dass die Durchlässigkeiten bei hohen Feuchten (75 % r.F.) erhöht sind, während die Temperaturabhängigkeit eher gering ist. Die schwache Temperaturabhängigkeit ist auf den ersten Blick überraschend, da auch für Wasserdampf eine exponentielle Abhängigkeit nach Arrhenius angenommen werden kann. Eine mögliche Erklärung ist die geringe Aktivierungsenergie von PET für Wasserdampf, die nur ca. 2 kJ/mol beträgt [Lan1998]. Bei derart niedrigen Aktivierungsenergien ist der Temperatureinfluss annähernd vernachlässigbar. Da bei den metallisierten Folien die Aluminiumschicht auf PET aufgedampft ist, sollte die Temperaturabhängigkeit von PET auch die Temperaturabhängigkeit der Mehrschichtfolie beeinflussen. Bei anderen Po-

lymeren kann eine deutlich stärkere Temperaturabhängigkeit auftreten. Die Dampfdurchlässigkeit hängt deutlich von der relativen Feuchte ab. Eine Abhängigkeit war aufgrund der theoretischen Betrachtungen zu erwarten. Allerdings wird durch diesen Feuchteinfluss eine genaue Abschätzung der Massenzunahme erschwert, da die funktionale Abhängigkeit zwischen Durchlässigkeit und relativer Feuchte nicht bekannt ist.

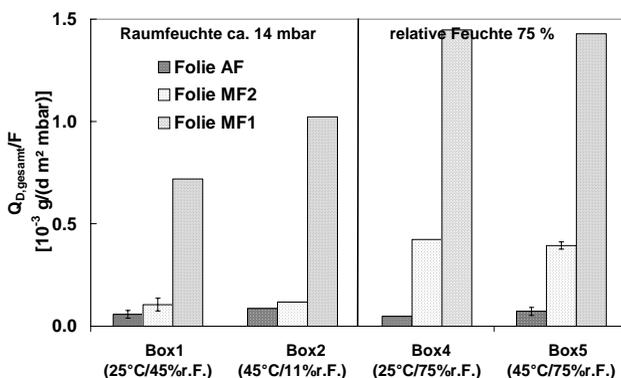


Abbildung 4-12. druckbezogene Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit pro Paneelfläche $Q_{D,gesamt}/F$ von VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei den Temperaturen 25 °C und 45 °C und bei Raumfeuchte und 75 % r.F..

4.2.3. Bewertung Klimaeinfluss

Wie aus theoretischen Überlegungen zu erwarten war, wurde gemäß Abbildung 4-11 eine Temperaturabhängigkeit der Durchlässigkeit für Luftgase festgestellt. Darüber hinaus zeigte sich eine Abhängigkeit von der Paneelgröße und von der relativen Luftfeuchte. Der Einfluss der Paneelgröße wird möglicherweise durch eine längenbezogene Durchlässigkeit (Siegelnaht) hervorgerufen. Die erhöhten Druckanstiege bei hohen Luftfeuchten scheinen vom zusätzlich eindringenden Wasserdampf beeinflusst. Die Wasserdampfdurchlässigkeit hängt ebenfalls von Temperatur, relativer Feuchte und in gewissem Maß von der Paneelgröße ab. Dabei ist zu beachten, dass die Wasserdampfdurchlässigkeit direkt vom Dampfdruckunterschied inner- und außerhalb des VIPs abhängt, der das treibende Potenzial für den Massentransport ist. Der Dampfdruck ändert sich mit der relativen Feuchte und, bei gleicher relativer Feuchte, mit der Temperatur. Betrachtet man die auf den Dampfdruck bezogene Wasserdampfdurchlässigkeit, dann zeigt sich bei den hier untersuchten Folien eine explizite Abhängigkeit von der relativen Feuchte, aber kaum eine Temperaturabhängigkeit. Insgesamt werden die Durchlässigkeiten deutlich vom Klima und von der Paneelgröße beeinflusst. Vor allem der Einfluss der Paneelgröße und der Einfluss der Feuchte werden in den weiteren Kapiteln eingehender untersucht.

4.3. Einfluss der VIP-Größe auf Druck- und Massenanstieg

4.3.1. Messergebnisse bei unterschiedlichen Paneelgrößen

4.3.1.1 Luftdruckanstieg bei verschiedenen Paneelgrößen

Um ausschließlich den Druckanstieg durch eindringende Luftgase ermitteln zu können, wurden VIPs bei trockener Luft von 23 °C / 15 % r.F. in einer Klimakammer gelagert (Kapitel 3.3). Unter diesen Bedingungen kann der Druckanstieg im Paneel durch Wasserdampf vernachlässigt werden (aus der Wägung lassen sich mit $p_{D= \varphi(X_w) \cdot p_{D, sat}(T)}$ Dampfdruckanstiegsraten unter 0,1 mbar/a abschätzen). Um den Einfluss der Paneelgröße bestimmen zu können, wurden die Druckanstiege an drei unterschiedlichen Paneelgrößen (10 x 10 x 1 cm³, 20 x 20 x 1 cm³ und 40 x 40 x 1 cm³) untersucht, wobei je Paneelgröße drei Paneele gemessen wurden. Abbildung 4-13 zeigt die Druckanstiege, die an den 9 VIPs mit der Folie MF1 gemessen wurden. In der Abbildung sind lineare Druckanstieg mit der Zeit zu erkennen, die, bei gleicher Paneeldicke, stark von der Paneelgröße abhängen. Aus der Steigung der Fit-Geraden lässt sich direkt die mittlere Druckanstiegsrate für ein VIP ermitteln.

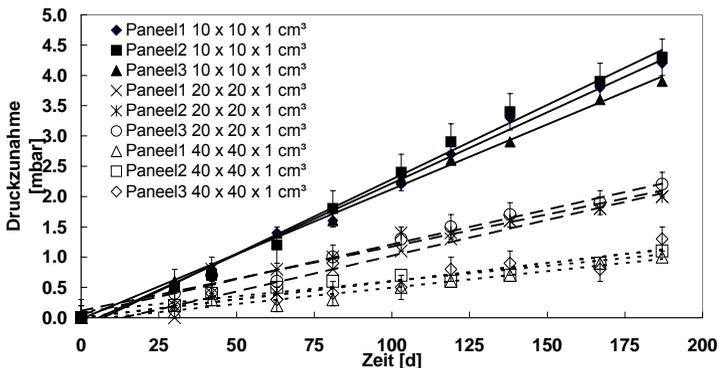


Abbildung 4-13: Druckanstieg mit der Zeit von gleich dicken VIPs mit der Folie MF1 in den drei verschiedenen Paneelgrößen (10 x 10 x 1 cm³, 20 x 20 x 1 cm³ und 40 x 40 x 1 cm³) bei 23 °C / 15 % r.F.. Der Druckanstieg ist ausschließlich durch die Luftgase N₂ und O₂ bedingt. Für ein VIP je Paneelgröße sind die Fehlerbalken eingezeichnet. Zusätzlich sind die Fit-Geraden dargestellt.

In Abbildung 4-14 sind die Druckanstiege mit der Zeit für die Folientypen AF, MF1 und MF2 dargestellt, wobei zur besseren Übersicht je Paneelgröße der mittlere Druckanstieg gezeigt wird (gemittelt über die Druckanstiege an den jeweils drei gleich großen Paneelen). In guter Näherung ist eine Verdoppelung des Druckanstiegs bei Halbierung der Kantenlänge der quadratischen Paneele festzustellen.

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖÖE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 61

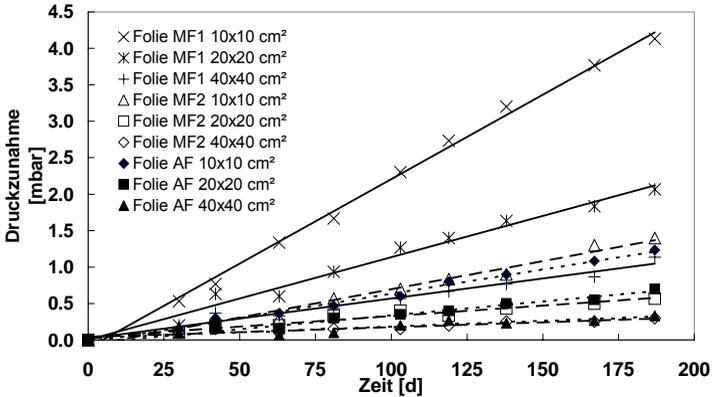


Abbildung 4-14: gemittelte Luftdruckanstiege (über drei gleichgroße Paneele) als Funktion der Zeit für unterschiedlich große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei 23 °C / 15 % r.F.. Der Druckanstieg ist ausschließlich durch die Luftgase N₂ und O₂ bedingt. Zusätzlich sind die Fit-Geraden dargestellt.

In Tabelle 4-3 sind die mittleren Druckanstiegsraten je Folie und Paneelformat und die daraus berechneten Gesamtluftdurchlässigkeiten eingetragen.

Tabelle 4-3: Druckanstiege und Gesamtluftdurchlässigkeiten für unterschiedlich große, quadratische VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei 23 °C / 15 % r.F.. (angegeben sind Mittelwerte und Standardabweichungen aus Messungen an je drei identisch gefertigten Paneelen).

Kantenlänge [cm]	Folie AF			Folie MF1			Folie MF2		
	10	20	40	10	20	40	10	20	40
Druckanstiegsrate [mbar/a]	2,6 ± 0,3	1,2 ± 0,1	0,5 ± 0,2	9,2 ± 0,5	4,2 ± 0,3	2,2 ± 0,3	2,7 ± 0,5	1,1 ± 0,2	0,5 ± 0,3
Q _{Luft,gesamt} [10 ⁻³ cm ³ /(d·bar)]	0,7 ± 0,1	1,3 ± 0,2	2,4 ± 0,4	2,3 ± 0,2	4,7 ± 0,3	10,8 ± 0,8	0,7 ± 0,1	1,1 ± 0,1	2,0 ± 0,8

In Tabelle 4-3 lässt sich erkennen, dass sich die Druckanstiegsrate bei Halbierung der Kantenlänge in etwa verdoppelt (vgl. Abbildung 4-14). Die Gesamtdurchlässigkeit, d.h. die pro Zeiteinheit eindringende Gasmenge, halbiert sich annähernd mit Halbierung der Kantenlänge. Nach Kapitel 2.4.3 setzt sich die Gesamtdurchlässigkeit aus einer Flächen- und Längendurchlässigkeit zusammen. Diese lässt sich für quadratische VIPs mit Kantenlänge K ($F = 2 \cdot K^2$, $L = 4 \cdot K$) darstellen gemäß

$$Q_{\text{Luft,gesamt}} = Q_{\text{Luft,F}} \cdot F + Q_{\text{Luft,L}} \cdot L = Q_{\text{Luft,F}} \cdot 2 \cdot K^2 + Q_{\text{Luft,L}} \cdot 4 \cdot K. \quad (4-1)$$

Man erkennt, dass der wesentliche Beitrag zur Gesamtdurchlässigkeit für die hier untersuchten Umhüllungen und Paneelformate von der Längendurchlässigkeit hervorgerufen wird. Dividiert man nämlich die Gesamtdurchlässigkeit durch die Fläche $F = 2 \cdot K^2$, dann ergibt sich die flächenbezogene Gesamtdurchlässigkeit zu

$$\frac{Q_{\text{Luft,gesamt}}}{F} = Q_{\text{Luft,F}} + Q_{\text{Luft,L}} \cdot \frac{2}{K} \quad (4-2)$$

Trägt man $Q_{\text{Luft,gesamt}}$ über $2/K$ auf, so lässt sich die Längendurchlässigkeit aus der Steigung der Regressionsgeraden bestimmen: Je größer die Steigung, desto höher ist die Längendurchlässigkeit. Der y-Achsenabschnitt entspricht nach Gleichung (4-2) der Flächendurchlässigkeit.

In den nachfolgenden drei Abbildungen (Abbildung 4-15, 4-16 und 4-17) sind die flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeiten der Folien AF, MF1 und MF2 über $2/K$ Kantenlänge und die Regressionsgeraden nach Gleichung (4-2) eingezeichnet. Zusätzlich sind noch Grenzkurven eingetragen, aus denen sich obere und untere Grenzwerte für die Steigung bzw. die Längendurchlässigkeit und den y-Achsenabschnitt bzw. die Flächendurchlässigkeit ableiten lassen. Die aus der Regression ermittelten Längendurchlässigkeit und die aus den Grenzkurven abgeleiteten Fehlerintervalle sind in Tabelle 4-4 eingetragen. Die aus den Grenzkurven ermittelten y-Achsenabschnitte weisen eine so hohe Spreizung auf, dass sich eine signifikante Flächendurchlässigkeit nicht angeben lässt. Aus diesem Grund wurde in Tabelle 4-4 nur eine obere Abschätzung für die Flächendurchlässigkeit angegeben, die sich aus dem oberen y-Achsenabschnitt der beiden Grenzkurven ergibt.

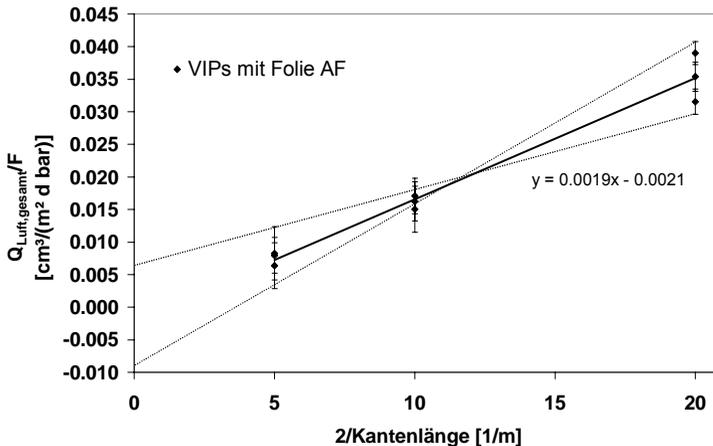


Abbildung 4-15: Auftragung der aus den Druckanstiegsraten ermittelten flächenbezogenen Gesamtluftdurchlässigkeit $Q_{\text{Luft,gesamt}}/F$ über $2/K$ Kantenlänge für unterschiedlich große VIPs, umhüllt mit der Folie AF bei 23 °C / 15 % r.F. (3 VIPs je Paneelgröße zu 40 x 40 cm², 20 x 20 cm² und 10 x 10 cm²).

Abbildung 4-16 zeigt die flächenbezogene Gesamtdurchlässigkeit für die VIPs mit der Folie MF1. Zu beachten sind die unterschiedlichen Maßstäbe an den y-Achsen zwischen Abbildung 4-15 und Abbildung 4-16. Bei der Folie MF1 wurden höhere Druckanstiege gemessen, die folglich höheren Durchlässigkeiten ergeben.

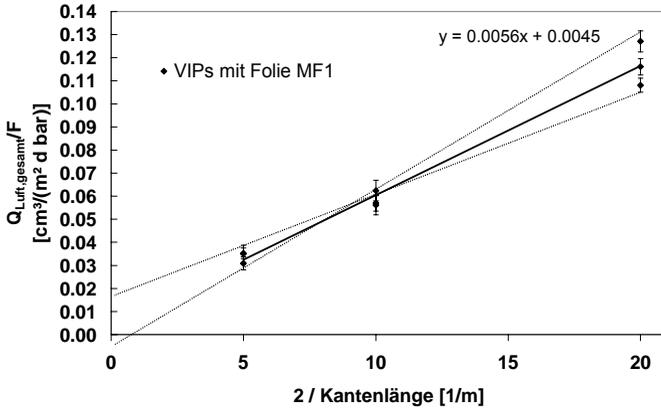


Abbildung 4-16: Auftragung der aus den Druckanstiegsraten ermittelten flächenbezogenen Gesamtluftdurchlässigkeit $Q_{Luft,gesamt}/F$ über $2/Kantenlänge$ für unterschiedlich große VIPs, umhüllt mit der Folie MF1 bei $23\text{ °C} / 15\% \text{ r.F.}$ (3 VIPs je Paneelgröße zu $40 \times 40\text{ cm}^2$, $20 \times 20\text{ cm}^2$ und $10 \times 10\text{ cm}^2$).

Abbildung 4-17 zeigt die Durchlässigkeit für VIPs mit der Folie MF2. Der Maßstab der y-Achse entspricht dem in Abbildung 4-15, da VIPs mit der Folie AF und MF2 ähnliche Druckanstiege aufweisen.

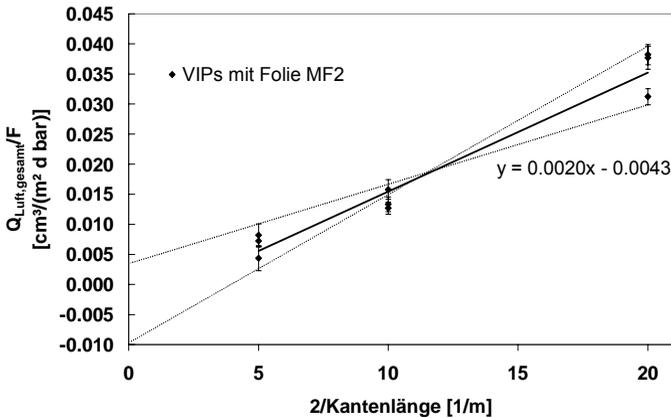


Abbildung 4-17: Auftragung der aus den Druckanstiegsraten ermittelten flächenbezogenen Gesamtluftdurchlässigkeit $Q_{Luft,gesamt}/F$ über $2/Kantenlänge$ für unterschiedlich große VIPs, umhüllt mit der Folie MF2 und $23\text{ °C} / 15\% \text{ r.F.}$ (3 VIPs je Paneelgröße zu $40 \times 40\text{ cm}^2$, $20 \times 20\text{ cm}^2$ und $10 \times 10\text{ cm}^2$).

In Tabelle 4-4 sind Längen- und Flächendurchlässigkeiten für die VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 angegeben, die nach der oben beschriebenen Weise ermittelt wurden.

Tabelle 4-4: Luftdurchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. für VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2, ermittelt durch lineare Regression ($F = 2 \cdot K^2$, $L = 4 \cdot K$) aus den an unterschiedlich großen VIPs (40 x 40 cm², 20 x 20 cm² und 10 x 10 cm²) gemessenen Druckanstiegen.

Folie	$Q_{\text{Luft,F}}$ [cm ³ /(m ² ·d·bar)]	$Q_{\text{Luft,L}}$ [cm ³ /(m·d·bar)]
AF	< 0,006	0,0019 ± 0,0005
MF1	< 0,016	0,0055 ± 0,0012
MF2	< 0,004	0,0020 ± 0,0005

Während für die Folienumhüllungen aus der linearen Regression nach Gleichung (4-2) signifikante Längendurchlässigkeiten ermittelt werden konnten, konnte eine Flächendurchlässigkeit nicht aufgelöst werden. Warum die Bestimmung der Flächendurchlässigkeit schwierig ist, wird deutlich, wenn man die längenbedingten Druckanstiege mit den flächenbedingten Druckanstiegen vergleicht. Die Druckanstiege werden aus den Flächen- und Längendurchlässigkeiten in Tabelle 4-4 berechnet. Dabei ist zu beachten, dass die flächenbedingten Druckanstiege eine obere Abschätzung darstellen, da sie aus den oberen Grenzwerten der Flächendurchlässigkeit berechnet werden. In Tabelle 4-5 sind die längenbedingte Druckanstiege für die Paneelgrößen 10 x 10 x 1 cm³, 20 x 20 x 1 cm und 40 x 40 x 1 cm³ eingetragen, die mit den Längendurchlässigkeit 0,002 cm³/(m·d) und 0,0055 cm³/(m·d) sowie mit den Flächendurchlässigkeiten 0,005 cm³/(m²·d) und 0,015 cm³/(m²·d) berechnet wurden. Diese Werte entsprechen annähernd den an den Folienumhüllungen AF und MF2 bzw. an MF1 ermittelten Längendurchlässigkeiten und den oberen Abschätzungen der Flächendurchlässigkeit.

Tabelle 4-5: Längen- und flächenbedingte Druckanstiegsraten für die Paneelformate 10 x 10 x 1 cm³, 20 x 20 x 1 cm³, 40 x 40 x 1 cm³, berechnet aus den oben ermittelten bzw. abgeschätzten Werten der Längen- und Flächendurchlässigkeit.

Panelgröße	10 x 10 x 1 cm ³	20 x 20 x 1 cm ³	40 x 40 x 1 cm ³
Umfang [m]	0,4	0,8	1,6
Fläche [m ²]	0,02	0,08	0,32
Längenbedingte Druckanstiegsrate in mbar/a bei $Q_{\text{L,Luft}}=0,002 \text{ cm}^3/(\text{m} \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$	2,9	1,5	0,7
Flächenbedingte Druckanstiegsrate in mbar/a bei $Q_{\text{F,Luft}}=0,005 \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$	0,4	0,4	0,4
Längenbedingte Druckanstiegsrate in mbar/a bei $Q_{\text{L,Luft}}=0,0055 \text{ cm}^3/(\text{m} \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$	8,0	4,0	2,0
Flächenbedingte Druckanstiegsrate in mbar/a bei $Q_{\text{F,Luft}}=0,015 \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$	1,1	1,1	1,1

Die abgeschätzten Druckanstiegsraten tragen vor allem bei kleinen Paneelen nur sehr wenig zum Druckanstieg bei (maximal etwa ein Siebtel). Aber auch bei größeren Paneelen überwiegt der längenbedingte Druckanstieg. Vergleicht man darüber hinaus noch die Ungenauigkeiten der längenbedingten Druckanstiegsraten, die sich aus dem Fehler der Längendurchlässigkeit berechnen lassen, dann zeigt sich, dass der Fehler in der längenbedingten Druckanstiegsrate, zumindest bei kleinen Paneelen, größer ist als die obere Abschätzung der flächenbedingten Druckanstiegsrate. So entspricht ein Fehler von $\pm 0,0005 \text{ cm}^3/(\text{m}\cdot\text{d})$ bei den Folien AF und MF2 bei kleinen VIPs von $10 \times 10 \text{ cm}^2$ einer Streuung in der Druckanstiegsrate von $\pm 0,7 \text{ mbar/a}$. Ein Fehler von $\pm 0,0012 \text{ cm}^3/(\text{m}\cdot\text{d})$ bei der Folie MF1 hat ein Streuung von $\pm 1,8 \text{ mbar/a}$ zur Folge. Insgesamt ist eine Bestimmung der Flächendurchlässigkeit deswegen so schwierig, weil der Beitrag der Flächendurchlässigkeit zur Gesamtdurchlässigkeit bzw. zum Druckanstieg bei den hier untersuchten Folien und Paneelformaten deutlich kleiner als die dominierende Längendurchlässigkeit.

Aus den Messungen lassen sich Verbesserungsansätze zur Bestimmung der Flächendurchlässigkeit ableiten. Betrachtet man die Streuung in den Messwerten in Abbildung 4-15 bis Abbildung 4-17, dann erkennt man zwei möglich Ursachen für die großen Streuwerte. Zum einen ist eine deutliche Streuung zwischen einzelnen Werten $Q_{\text{Luft,gesamt}}/F$ bei gleicher Paneelgröße vorhanden, zum anderen sind die einzelnen Werte selbst fehlerbehaftet. Die große Streuung zwischen gleich großen Paneelen ist wohl auf fertigungsbedingte Einflüsse zurückzuführen (insbesondere bei kleinen Paneelen mit $2/K = 20 \text{ 1/m}$, z.B. durch Einflüsse des Siegelprozesses). Die Fehler in der Druckanstiegsrate eines einzelnen Paneels sind bedingt durch den Fehler in der Druckmessung, die sich stärker bei größeren Paneelen mit kleineren Druckanstiegen auswirken. Für eine Bestimmung der Flächendurchlässigkeit ist die Messung an sehr kleinen Paneelen als kritisch zu bewerten, da hier der Einfluss der Längendurchlässigkeit und der Fertigungsfehler auf den Druckanstieg in der Regel sehr groß ist. Bei der Druckmessung an großen Paneelformaten erhöht sich zwar der Anteil des flächenbedingten Druckanstiegs, zugleich wird der Druckanstieg aber kleiner, so dass die Bestimmung des Druckanstiegs selbst ungenauer wird. Für zukünftige Untersuchungen wäre ein verbessertes Druckmessverfahren wichtig, um die Druckanstiege bei größeren Paneelformaten genauer messen zu können. Darüber hinaus sollten die fertigungsbedingten Schwankungen reduziert werden, z.B. über eine automatisierte und qualitätskontrollierte Fertigung.

Die bisherigen Betrachtungen sind von einer idealisierten Beziehung zwischen Fläche und Umfang ausgegangen ($F = 2 \cdot K^2$, $L = 4 \cdot K$ mit $K = \text{Kantenlänge des Kernmaterials}$), um die Zusammenhänge zwischen Flächen und Längendurchlässigkeit einfacher veranschaulichen zu können. Somit liefern die bisherigen Betrachtungen eine vereinfachte Abschätzung der Durchlässigkeitswerte. Bei genauer Betrachtung muss die Seitenfläche der VIPs bei der Flächenermittlung berücksichtigt werden. Bei der Siegelnaht kann die Angabe auf den Umfang des Kernmaterials oder auf den äußeren Umfang der Siegelnaht bezogen werden (im Weiteren wird der Mittelwert von beiden verwendet). Für die genaue Bestimmung der Flächen- und Längendurchlässigkeit sollten die korrekten Werte für Fläche

und Umfang angesetzt werden. Die Durchlässigkeiten lassen sich durch multiple lineare Regression mit den beiden unabhängigen Variablen Fläche und Umfang ermitteln. In Tabelle 4-6 sind die auf diese Weise ermittelten Durchlässigkeiten mit einfachem Vertrauensintervall angegeben.

Tabelle 4-6: Luftdurchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. von VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2, ermittelt durch lineare Regression bei genauem Flächen- und Längenbezug (s.o.) aus den bei unterschiedliche großen VIPs (40 x 40 cm², 20 x 20 cm², 10 x 10 cm²) gemessenen Druckanstiegen (n.a.= nicht auflösbar).

Folie	$Q_{\text{Luft,F}} [\text{cm}^3/(\text{m}^2\cdot\text{d}\cdot\text{bar})]$	$Q_{\text{Luft,L}} [\text{cm}^3/(\text{m}\cdot\text{d}\cdot\text{bar})]$
AF	n.a.	0,0016 ± 0,0002
MF1	0,008 ± 0,004	0,0045 ± 0,0007
MF2	n.a.	0,0015 ± 0,0004

Vergleicht man die unterschiedlichen Längendurchlässigkeiten zwischen einfacher Regression über $2/K$ (Tabelle 4-4) und multipler linearer Rekursion (Tabelle 4-6), dann sieht man den Einfluss, den der unterschiedliche Flächen- und Längenbezug auf die Durchlässigkeitswerte hat. Eine wesentliche Änderung der Durchlässigkeitswerte ist nicht festzustellen. Auch ist das einfache Vertrauensintervall etwa um einen Faktor 2 kleiner als die Fehlerintervalle, die sich aus der Grenzkurvenbetrachtung ergeben haben.

Eine Regressionsanalyse liefert die bestmöglichen Fit-Parameter für ein gegebenes Modell. Das hier angenommene Modell des linearen Beitrags von Flächen- und Längendurchlässigkeit kann die Messergebnisse im Rahmen der Messgenauigkeit erklären. Nicht plausibel sind die schwach negativen Flächendurchlässigkeiten bei den VIPs mit den Folien AF und MF2 (s. Abbildung 4-15 und Abbildung 4-17). Sie könnten ein Hinweis darauf sein, dass der Modellansatz nicht vollständig ist. Eine mögliche Modellerweiterung wäre die Annahme einer vom Paneelformat unabhängige Durchlässigkeit, z.B. eine Durchlässigkeit im Bereich der VIP-Ecken. Die Datenbasis bietet keine Möglichkeit diesbezüglich eine genauere Analyse durchzuführen. Hier sind weitere Untersuchungen erforderlich. Im Anhang wird diskutiert (s. Anhang B), wie sich eine mögliche Eckendurchlässigkeit auswirken würde. Obwohl bei allen Folien, die in den Klimakammern gemessen wurden, die Siegelnaht aus einer 50 µm dicken PE-Schicht besteht und alle VIPs mit dem gleichen Verfahren gesiegelt wurden, treten bei der Folie MF1 deutlich höhere Längendurchlässigkeiten für Luftgase als bei den Folien AF und MF2. Mögliche Ursachen für dieses Verhalten werden im Kapitel 4.3.2.2 diskutiert.

4.3.1.2 Massenzunahme bei verschiedenen Paneelgrößen

Abbildung 4-18 zeigt die Massenzunahmen mit der Zeit, die an den 9 VIPs mit der Folie MF1 bei 23 °C / 75 % r.F. gemessen wurden. In der Abbildung sind lineare Massenzunahmen mit der Zeit zu erkennen, die stark von der Paneelgröße abhängen. Paneel 1 mit der Größe 40 x 40 cm² weist eine etwas höhere Massenzunahme auf als die beiden anderen Paneele gleichen Formats. Dieses Paneel war nach weniger als 200 Tagen belüftet, was auf einen Fertigungsfehler hinweist.

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖßE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 67

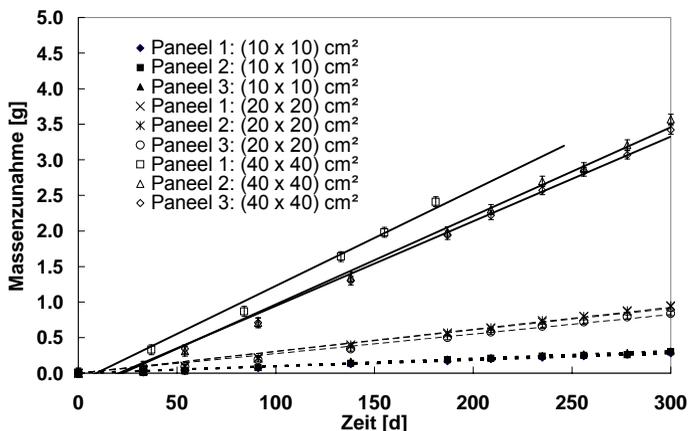


Abbildung 4-18: : Massenzunahme mit der Zeit von VIPs mit der Folie MF1 in den drei verschiedenen Paneelgrößen ($10 \times 10 \times 1 \text{ cm}^3$, $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$ und $40 \times 40 \times 1 \text{ cm}^3$) bei $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ } \%$ r.F.. Zusätzlich sind die Fit-Geraden dargestellt.

In Abbildung 4-14 sind die Massenzunahmen mit der Zeit für alle Folientypen AF, MF1 und MF2 dargestellt, wobei zur besseren Übersicht je Paneelgröße nur eine Massenzunahme als Mittelwert über die Massenzunahme der jeweils drei gleich großen Paneele eingetragen ist.

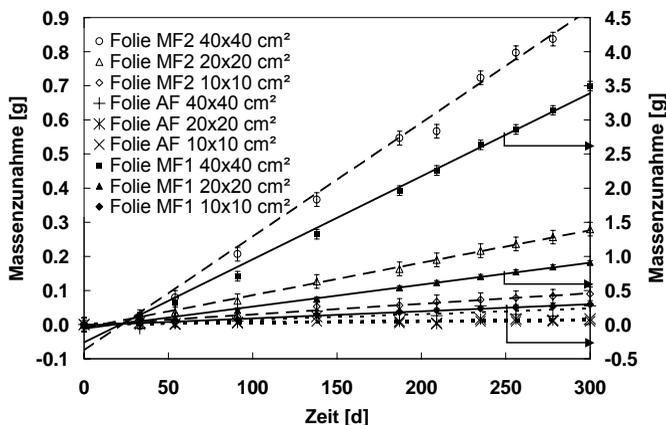


Abbildung 4-19 gemittelte Massenzunahmen (über drei gleichgroße Paneele) mit der Zeit für unterschiedlich große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ } \%$ r.F.. Zusätzlich sind die Fit-Geraden dargestellt.

Die VIPs weisen deutliche Unterschiede in der Massenzunahme auf. Bei den Umhüllungen mit den Aluminiumverbundfolien AF sind die Massenzunahme so

niedrig, dass sie auch nach fast einem Jahr, insbesondere bei kleinen Paneelen ($10 \times 10 \text{ cm}^2$), noch im Bereich der Messauflösung der Waage von $0,02 \text{ g}$ liegen und somit sehr ungenau sind.

Die Steigung der Fit-Geraden in Abbildung 4-19 entsprechen den Massenanstiegsraten der VIPs und somit den Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten (s. (2-45). Tabelle 4-7 enthält die den Massenanstiegsraten entsprechenden Werte von $Q'_{\text{Dampf,gesamt}}$ für alle Paneelformate und Folientypen.

Tabelle 4-7: Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten für unterschiedlich große quadratische VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei $23 \text{ }^\circ\text{C}$ / 75% r.F. (angegeben sind Mittelwerte und Standardabweichungen aus Messungen an je drei identisch gefertigten Paneelen).

Kante [cm]	Folie AF			Folie MF1			Folie MF2		
	10	20	40	10	20	40	10	20	40
$Q'_{\text{Dampf,gesamt}}$ [10^{-3} g/d]	0,02 $\pm 0,01$	0,05 $\pm 0,03$	0,17 $\pm 0,07$	1,0 $\pm 0,1$	3,3 $\pm 0,2$	12,2 $\pm 0,3$	0,32 $\pm 0,02$	1,0 $\pm 0,2$	3,3 $\pm 0,3$

Bei den VIPs mit Aluminiumverbundfolie sind die Massenanstiegsraten bzw. die Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten um eine Größenordnung niedriger als bei den VIPs mit metallisierten Folien. Die zugehörigen Massenzunahmen liegen bei den AF-Folien im Bereich der Messauflösung der Waage, weshalb die Werte stark fehlerbehaftet sind. Auch bei den VIPs mit den metallisierten Folien sind deutliche Unterschiede in der Massenzunahme je nach verwendeter Folie festzustellen. So weisen VIPs mit der Folie MF1 etwa dreifach höhere Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten im Vergleich zu VIPs mit der Folie MF2 auf. Vergleicht man die Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten von VIPs mit einem Folientyp aber unterschiedlicher Kantenlänge, so erkennt man, dass sich mit Verdoppelung der Kantenlänge die Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit etwas mehr als verdreifacht ($\sim 3,2$ bis $3,6$). Dies deutet darauf hin, dass sowohl eine Flächen- als auch eine geringe Längendurchlässigkeit zur Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit beiträgt.

Die Flächen- und Längendurchlässigkeiten für Wasserdampf lassen sich mittels Rekursion nach Gleichung (4-2) ermitteln. In Abbildung 4-20 sind für alle untersuchten Paneelformate und Folientypen die Gesamtwasserdampfdurchlässigkeiten pro Paneelfläche $Q_{\text{Dampf,gesamt}}/F$ über den Kehrwert der Kantenlänge aufgetragen. Im Unterschied zum Druckanstieg sind hier signifikante Flächendurchlässigkeiten (Offset der y-Achse) vorhanden, während die Steigungen flach und somit die Längendurchlässigkeiten niedrig sind. Auf eine detaillierte Betrachtung der einzelnen Folientypen wird hier verzichtet. In Tabelle 4-8 sind die aus der multiplen linearen Regression über Fläche und Umfang ermittelten Längen- und Flächendurchlässigkeiten für Wasserdampf angegeben (die Regression wurde im Kapitel 4.3.1.1. beschrieben).

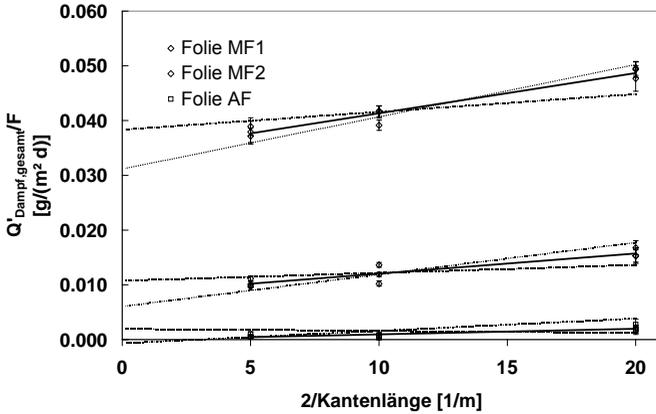


Abbildung 4-20: Auftragung der aus den Massenzunahmen ermittelten flächenbezogenen Gesamtdampfdurchlässigkeit $Q'_{Dampf,gesamt}/F$ über $2/Kantenlänge$ für unterschiedlich große VIPs, umhüllt mit der Folie AF, MF1 und MF2 (3 VIPs Folie und je Paneelgröße von $40 \times 40 \text{ cm}^2$, $20 \times 20 \text{ cm}^2$ und $10 \times 10 \text{ cm}^2$).

Tabelle 4-8: Wasserdampfdurchlässigkeiten bei $23 \text{ °C} / 75 \text{ \% r.F.}$ für unterschiedlich große VIPs ($40 \times 40 \text{ cm}^2$, $20 \times 20 \text{ cm}^2$ und $10 \times 10 \text{ cm}^2$) mit den Folien AF, MF1 und MF,2 ermittelt durch Regression aus den Massenzunahmen.

Folie	$Q'_{Dampf,F}$ [g/(m²·d)]	$Q'_{Dampf,L}$ [g/(m·d)]
AF	$0,0007 \pm 0,0004$	-
MF1	$0,0346 \pm 0,0013$	$0,0007 \pm 0,0003$
MF2	$0,0085 \pm 0,0010$	$0,0004 \pm 0,0002$

Bei der Aluminiumverbundfolie AF sind die Dampfdurchlässigkeiten deutlich kleiner als bei den metallisierten Folien. Sie konnten trotz langer Messzeit von annähernd einem Jahr nur mit großer Ungenauigkeit bestimmt werden. Bei den metallisierten Folien ist eine deutliche Flächendurchlässigkeit vorhanden, die Längendurchlässigkeiten sind nur ungenau bestimmbar.

Die Massenanstiege wurden nicht nur bei $23 \text{ °C} / 75 \text{ \%}$, sondern auch bei $23 \text{ °C} / 15 \text{ \% r.F.}$ gemessen. Die Massenzunahmen sind allerdings so niedrig, dass nur bei den großen VIPs mit metallisierten Folien die Anstiege messbar waren. Abbildung 4-21 zeigt die Massenanstiege der (40×40) cm^2 großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2. Dargestellt sind die Mittelwerte, die sich aus den Messungen an den drei jeweils gleichgroßen Paneelen ergeben. Die Messschwankungen sind durch die Wägung bedingt. Aus den Steigungen kann die flächenbezogene Gesamtwasserdampfdurchlässigkeit $Q'_{Dampf,gesamt}/F$ ermittelt werden. Interessant ist nun ein Vergleich mit der bei $23 \text{ °C} / 75 \text{ \% r.F.}$ gemessenen Durchlässigkeit. Zum direkten Vergleich ist es erforderlich, beide Durchlässigkeiten auf den anlie-

genden Druck¹² zu beziehen. Tabelle 4-9 zeigt die auf den Dampfdruck (in mbar) bezogenen Werte $Q_{\text{Dampf,gesamt}}/F$ für die beiden Klimabedingungen bei hoher und niedriger relativer Luftfeuchte.

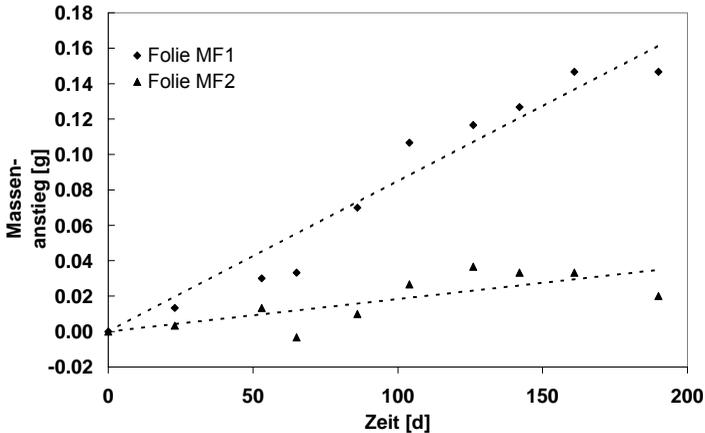


Abbildung 4-21: Massenzunahme der VIPs mit den Folien MF1 und MF2 für das Paneelformat 40 x 40 cm² und bei dem Klima 23 °C / 15 % r.F.

Tabelle 4-9: auf den Dampfdruck und auf die Paneelfläche bezogene Dampfdurchlässigkeit bei 23 °C / 75 % r.F. für 40 x 40 cm² große VIPs mit den Folien MF1 und MF2.

	$Q_{\text{Dampf,gesamt}}/F$ [10^{-3} g/(m ² ·d·mbar)]	
	bei 23 °C / 75 % r.F.	bei 23 °C / 15 % r.F.
Folie MF1	1,7 ± 0,1	0,6 ± 0,1
Folie MF2	0,41 ± 0,05	0,12 ± 0,06

Deutlich ist ein Unterschied in der druckbezogenen Dampfdurchlässigkeit zu erkennen. Dies zeigt, dass die Dampfdurchlässigkeit der Umhüllung explizit von der relativen Feuchte abhängt. Ein Einfluss der relativen Luftfeuchte auf die druckbezogene Dampfdurchlässigkeit ist plausibel (s. Kapitel 2.4.1), aber die funktionale Abhängigkeit ist nicht bekannt.

4.3.1.3 Druckanstieg durch Luft und Wasserdampf bei verschiedenen Paneelgrößen

An den bei der Klimabedingung 23 °C / 75 % r.F. gelagerten VIPs wurden neben den Massenanstiegen auch die Druckanstiege gemessen. Paneelanzahl, Folien und Paneelformat (Ausnahme: die Dicke der VIPs betrug ca. 0,75 cm) und auch Herstellverfahren waren identisch mit den Messungen bei 23 °C / 15 % r.F. Abbildung 4-22 zeigt die zu Abbildung 4-14 (23 °C / 15 % r.F.) analoge Darstel-

¹² Genau genommen muss anstelle des Drucks auf die anliegende Druckdifferenz bezogen werden. Da die VIPs zuvor getrocknet wurden, wird im VIP ein Dampfdruck von 0 mbar angesetzt.

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖÖE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 71

lung der Druckanstiege bei 23 °C / 75 % r.F. Für alle Paneelformate und Folientypen AF, MF1 und MF2 sind die Druckanstiege mit der Zeit zu sehen. Zur besseren Übersicht wird je Paneelgröße der mittlere Druckanstieg gezeigt (gemittelt über die Druckanstiege an den jeweils drei gleich großen Paneelen).

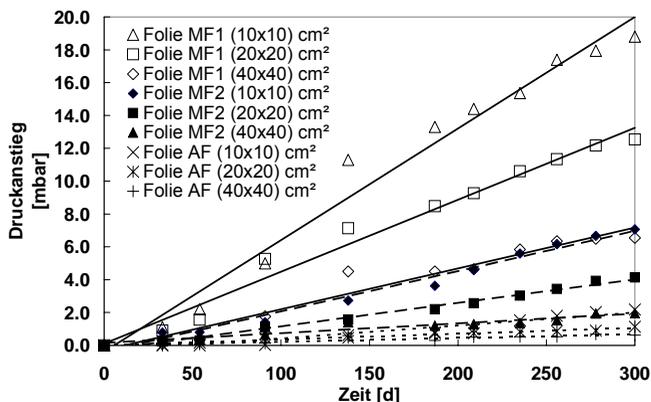


Abbildung 4-22: gemittelte Druckanstiege (über drei gleichgroße Paneele) mit der Zeit für unterschiedlich große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei 23 °C / 75 % r.F.. Alle Paneel waren 0,75 cm dick. Zusätzlich sind die Fit-Geraden dargestellt.

Wie ein Vergleich der Druckanstiege bei 23 °C / 75 % r.F. in Abbildung 4-22 mit den Druckanstiegen bei 23 °C / 15 % r.F. in Abbildung 4-14 zeigt, sind die Druckanstiege unter feuchten Umgebungsbedingungen bei VIPs mit den metallisierten Folien MF1 und MF2 um ein Mehrfaches höher als in trockener Umgebung. Dieser Effekt wurde auch bei den Messungen in den Klimaboxen beobachtet. Ein Teil des Druckanstiegs wird offensichtlich vom eindringenden Wasserdampf verursacht (s. Kapitel 4.2.2.1). Die Druckanstiege hängen, wie bei 23 °C / 15 % r.F., deutlich vom Paneelformat ab. In Tabelle 4-10 sind die aus den Fit-Geraden ermittelten Druckanstiegsraten und die daraus errechneten Gesamtdurchlässigkeiten für die bei 23 °C / 75 % r.F. untersuchten VIPs angegeben.

Tabelle 4-10: Druckanstiege durch Luft und Wasserdampf und daraus berechnete Gesamtdurchlässigkeiten für unterschiedlich große, quadratische VIPs (10 x 10 x 0,75 cm³, 20 x 20 x 0,75 cm³) mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei 23 °C / 75 % r.F.. (angegeben sind Mittelwerte und Standardabweichungen aus Messungen an je drei identisch gefertigten Paneelen).

	Folie AF		Folie MF1		Folie MF2	
	10	20	10	20	10	20
Kantenlänge [cm]	10	20	10	20	10	20
Druckanstiegsrate [mbar/a]	3,0 ± 0,5	1,3 ± 0,2	25 ± 1,4	16,3 ± 0,1	9,3 ± 1,4	5,2 ± 0,6
$Q_{\text{Luft}+\text{Dampf,gesamt}}$ [10 ⁻³ cm³/(d·bar)]	0,6 ± 0,1	1,1 ± 0,1	4,7 ± 0,3	12,5 ± 0,2	1,9 ± 0,3	4,3 ± 0,5

In Tabelle 4-10 wurden keine Druckanstiegsraten für die VIPs mit den Paneelgrößen 40 x 40 cm² angegeben. Ursache hierfür sind temperaturbedingte Abweichungen bei den Druckmessungen an den 40 x 40 cm² großen Paneelen¹³. Aus diesem Grund wird hier bei 23 °C / 75 % r.F. auf die Regression zur Ermittlung der Flächen- und Längendurchlässigkeit verzichtet. Im Anhang D wird gezeigt, wie der Temperatureinfluss abgeschätzt und korrigiert werden kann. Vergleicht man die an den kleinen und mittleren Paneelgrößen ermittelten und von der Paneeldicke unabhängigen Gesamtdurchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. (s. Tabelle 4-3) und bei 23 °C / 75 % r.F. (s. Tabelle 4-10), dann ist die Gesamtdurchlässigkeit bei 23 °C / 75 % r.F. für VIPs mit den metallisierten Folien MF1 und MF2 je nach Paneelgröße um etwa einen Faktor 2 bis 3 größer. Die Ursache hierfür und der Einfluss des Wasserdampfes wird in Kapitel 4.3.2.3 diskutiert.

4.3.2. Diskussion Einfluss Paneelgröße

4.3.2.1 Einfluss des Wasserdampfes auf Massenzunahme und Druckanstieg

Aus den Messungen der Massenanstiege wurden die Dampfdurchlässigkeiten für Fläche und Rand ermittelt. Aus den Durchlässigkeiten lässt sich der Wassergehaltsanstieg von VIPs für beliebige Paneelgrößen berechnen. Diese Kenngröße muss bekannt sein, um z.B. die feuchtebedingte Zunahme der Wärmeleitfähigkeit abschätzen zu können. Anhand der ermittelten Dampfdurchlässigkeiten sollen nun folgende Fragen diskutiert werden:

1. Welche Wassergehaltsanstiege treten abhängig von Paneelgröße und Folie bei einem Klima von 23 °C / 75 % auf?
2. Welche Dampfdruckanstiege ergeben sich aus der Wassergehaltszunahme?
3. Wie wirkt sich der Dampfdruck im VIP auf den weiteren Anstieg des Wassergehaltes aus?
4. Wie groß sind die feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeitsanstiege?
5. Lassen sich die an den VIPs gemessenen Flächendurchlässigkeiten mit den Wasserdampfdurchlässigkeiten der Folien gemäß Herstellerangabe vergleichen?

Die Wassergehaltanstiegsrate für beliebige Paneelgrößen kann direkt aus den Dampfdurchlässigkeiten für Fläche und Länge berechnet werden. Dazu muss der Massenanstieg pro Zeit nach Gleichung (2-45) berechnet und durch die Masse des trockenen VIPs dividiert werden. In Tabelle 4-11 sind für VIPs mit einem Paneelformat von 50 x 50 x 1 cm³ die Wassergehaltanstiegsraten über Fläche und Länge für die Folientypen AF, MF1 und MF2 berechnet, wobei zur Berechnung der VIP-Trockenmassen eine Rohdichte von 170 kg/m³ angenommen wurde. Die Berechnung erfolgte auf Basis der für die drei Folienumhüllungen in Tabelle 4-8 angegebenen Dampfdurchlässigkeiten für Fläche und Rand.

¹³Die Druckanstiege bei den großen Paneelen (40 x 40) cm² wurden in einer großen Vakuumkammer in einem teilbeheizten Technikum gemessen. Gerade das Ende des Messezeitraums lag in der Winterperiode. Dort traten teilweise Temperaturen von 15 °C und weniger auf, während im Sommer Temperaturen über 25 °C möglich waren. Bei den später bei 23 °C / 15 % r.F. durchgeführten Messungen ist zum einen der Temperatureinfluss geringer (kein Wasserdampf) und darüber hinaus wurde das Technikum vor den Messungen beheizt. Die Messungen an den kleinen Paneelen (10 x 10 cm² und 20 x 20 cm²) wurden immer im Labor bei einer Raumtemperatur von ~20 °C durchgeführt.

Tabelle 4-11: Berechnete Wassergehaltsanstiege pro Jahr über Fläche und Länge (Umfang) bei 23 °C / 75 % r.F. für VIPs mit den Folie AF, MF1 und MF2 für ein Paneelformat von 50 x 50 x 1 cm³ und mit einer Rohdichte von 170 kg/m³.

Folie	$dX_{w,F}/dt$ [M-%/a]	$dX_{w,L}/dt$ [M-%/a]
AF	0,03	-
MF1	1,5	0,1
MF2	0,4	0,07

Der Vergleich von Fläche und Länge zeigt, dass bei typischen Paneelformaten der Wassergehaltsanstieg über die Fläche deutlich überwiegt und der Einfluss der Länge näherungsweise vernachlässigbar ist. Bei VIPs mit Aluminiumverbundfolien sind die Anstiege in etwa eine Größenordnung kleiner als bei VIPs mit metallbedampften Folienumhüllungen. Auch zwischen metallisierten Folien sind deutliche Unterschiede im Wassergehaltsanstieg und somit in der Wasserdampfdurchlässigkeit festzustellen. Die Zunahme des Wasserdampfpartialdrucks im VIP lässt sich aus der Sorptionsisotherme $X_w(\varphi)$ bzw. mit ihrer Umkehrfunktion $\varphi(X_w)$ berechnen ($p_{Dampf} = \varphi(X_w) \cdot p_{Sat}(T)$). In Analogie mit Gleichung (2-44) kann dieser Dampfdruckanstieg in ein pro Zeit eingedrungenes Dampfvolumen umgerechnet werden. In Tabelle 4-12 ist die Dampfdruckanstiegsrate dp_{Dampf}/dt und der zugehörige Dampfvolumeneintrag pro Zeit angegeben, der sich aus den Dampfdurchlässigkeiten in Tabelle 4-8 für ein 50 x 50 x 1 cm³ großes VIP mit einer Dichte von 170 kg/m³ bei 20 °C ergibt. Der Dampfvolumeneintrag pro Zeit, angegeben als $dVE_{Dampf,gesamt}/dt$, entspricht dem pro Zeit eindringenden Dampfvolumen, das von der pyrogenen Kieselsäure nicht gebunden wird. Dieser Volumeneintrag ist keine Volumenzunahme, sondern gibt die eindringende, nichtadsorbierte Dampfmenge als Volumen in der Einheit cm³ an.

Tabelle 4-12: Berechnete Druckanstiegsraten über Fläche und Umfang für 50 x 50 x 1 cm³ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 und die zugehörigen Dampfvolumeneintragsraten $dVE_{Dampf,F}/dt$ bzw. $dVE_{Dampf,L}/dt$ bei 20 °C.

Folie	$dp_{Dampf,F}/dt$ [mbar/a]	$dp_{Dampf,L}/dt$ [mbar/a]	$dVE_{Dampf,F}/dt$ [cm ³ /(m ² -d)]	$dVE_{Dampf,L}/dt$ [cm ³ /(m-d)]
AF	0,07	0,01	0,001	0,00004
MF1	4,31	0,31	0,059	0,0011
MF2	1,10	0,17	0,015	0,0006

Für die hier betrachtete Panelgröße überwiegt deutlich der Druckanstieg über die Fläche. Bei metallisierten Folien sind die aus der Massenzunahme berechneten Dampfdruckanstiege (ca. 1 bis 4 mbar/a) so groß, dass sie gegenüber den durch trockenen Luftgase verursachten Druckanstieg keinesfalls vernachlässigt werden dürfen.

Eine weitere Folge des Dampfdruckanstiegs im VIP ist, dass der Dampfdruck im VIP $p_{Dampf,i}$ gegenüber dem außen anliegenden Dampfdruck $p_{Dampf,a}$ im Lauf der Zeit nicht mehr vernachlässigt werden kann. Die in Tabelle 4-12 angegebenen Dampfdruckanstieg pro Jahr gelten nur für trockene VIPs ($p_{Dampf,i} \approx 0$) und dürfen

nicht auf längere Zeiträume, in den der Dampfdruck im VIP nicht mehr vernachlässigt werden kann, extrapoliert werden. Berücksichtigt man in Gleichung (2-45) den Dampfdruck im VIP und dividiert man die Massenzunahme durch die Trockenmasse $m_{VIP,trocken}$ des VIPs, dann erhält man eine Differentialgleichung für die Änderung des massebezogenen Wassergehalts.

$$\dot{X}_{w,m}(t) = \frac{Q_{Dampf,gesamt}}{m_{VIP,trocken}} \cdot (p_{Dampf,a} - p_{Dampf,i}) = \frac{Q_{Dampf,gesamt}}{\rho_{VIP} \cdot V_{VIP}} \cdot p_{Sat}(T) \cdot (\varphi_a - \varphi_i(X_w)). \quad (4-3)$$

Wie im Kapitel 2.2.2 gezeigt, kann die Sorptionsisotherme der pyrogenen Kieselsäure gut durch eine lineare Beziehung $X_w = \alpha \cdot \varphi$ angenähert werden (hier für $\varphi < 75\%$ r.F.). Mit dieser Annahme kann Gleichung (4-3) analytisch gelöst werden.

$$X_{w,m}(t) = k \cdot \varphi_a \cdot \left(1 - \text{EXP} \left(\frac{-Q_{Dampf,gesamt} \cdot p_{Sat}(T)}{\rho_{VIP} \cdot V_{VIP} \cdot \alpha} \cdot t \right) \right). \quad (4-4)$$

Abbildung 4-23 zeigt den mit der Gleichung (4-4) berechneten Anstieg des Wassergehalts im Zeitraum von 25 Jahren für unterschiedliche große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2.

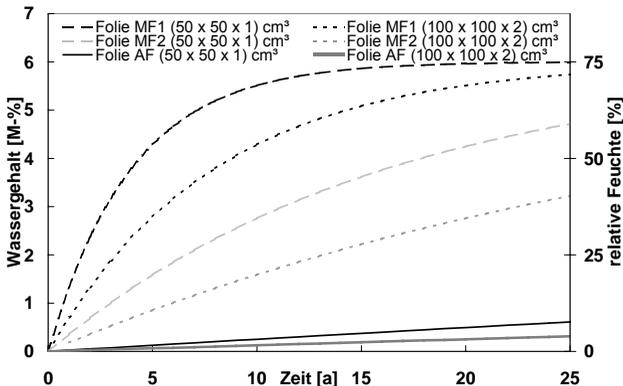


Abbildung 4-23: Wassergehaltsanstiege für VIPs mit unterschiedlichen Paneelgrößen ($50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ und $100 \times 100 \times 2 \text{ cm}^3$) und verschiedenen Folien (AF, MF1 und MF2), berechnet mit Gleichung (4-4) aus den bei $23^\circ\text{C} / 75\%$ r.F. ermittelten Dampfdurchlässigkeiten. Zusätzlich zum Wassergehalt ist die relative Feuchte angegeben (näherungsweise berechnet mit $\varphi = X_w/\alpha$).

Während bei der Folie MF1 der Wassergehalt eine Sättigung von annähernd 6 M-% nach ca. 25 Jahren erreicht, ist die Massenzunahme bei der Aluminiumverbundfolie AF auch nach 25 Jahren noch weitestgehend linear. Dieses unterschiedliche Verhalten, das auch von der Paneeldicke abhängig ist, ist bei der Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit unbedingt zu berücksichtigen.

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖÖE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 75

Für eine grobe Abschätzung des Feuchteinflusses auf die Wärmeleitfähigkeit wird eine lineare Abhängigkeit vom massenbezogenen Wassergehalt $X_{w,m}$ angenommen, wobei eine Steigung von $0,5 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{M}\cdot\%)$ angesetzt wird (s. Kapitel 4.1.2.1). In Tabelle 4-13 sind die anfänglichen Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten, die sich aus dem Wassergehaltsanstieg pro Jahr ergeben, und die Wärmeleitfähigkeiten nach 25 Jahren, ermittelt aus den nach Gleichung (4-4) berechneten Wassergehalten, für $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 und einer Rohdichte von $170 \text{ kg}/\text{m}^3$ angegeben.

Tabelle 4-13: Feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten und Wärmeleitfähigkeiten nach 25 Jahren für $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ große VIPs mit $\rho = 170 \text{ kg}/\text{m}^3$, mit den Folien AF, MF1 und MF2 und bei konstanten Klima von $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ \% r.F.}$.

	Folie AF	Folie MF1	Folie MF2
Feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitsanstiegsrate [$10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{a})$]	0,012	0,80	0,21
Feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitszunahme nach 25 Jahren [$10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$]	0,3	3,0	2,3

Während die feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeitsanstiege bei VIPs mit Aluminiumverbundfolien nahezu vernachlässigbar sind, ist bei VIPs mit metallisierten Folien ein deutlicher Anstieg von mehreren zehntel $10^{-3} \text{ W}/(\text{mK})$ pro Jahr festzustellen. Eine lineare zeitliche Extrapolation dieser Wärmeleitfähigkeitsanstiegsrate ist nicht zulässig, da aufgrund der nichtlinearen Wassergehaltszunahme die feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitszunahme deutlich niedriger ausfallen kann. Maximal kann der feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeit, wenn man einen maximalen Wassergehalt von 6 M-% annimmt, um $3 \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{mK})$ zunehmen. Bei Folien mit hoher Wasserdampfdurchlässigkeit wie die Folie MF1 wird dieser Wert nach 25 Jahren erreicht. Die angegebenen Werte gelten für das vorgegebene Paneelformat von $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$. Da der Wasserdampf vor allem über die Fläche in das VIP eindringt, ist die Wassergehaltsanstiegsrate annähernd unabhängig von der Größe (Umfang) des Paneels, aber umgekehrt proportional zur Dicke des VIPs.

Zum Abschluss der Diskussion bezüglich der Wasserdampfdurchlässigkeit soll ein Vergleich der gemessenen Flächendurchlässigkeiten für Wasserdampf und der Dampfdurchlässigkeit der Folien nach Herstellerangabe erfolgen (zum Vergleich s. Tabelle 3-3 und Tabelle 4-8). Bei der Folie AF wurde nur eine obere Abschätzung von $0,005 \text{ g}/(\text{m}^2\text{d})$ angegeben. Die gemessene Dampfdurchlässigkeit $Q^1_{\text{Dampf,F}}$ von $0,0006 \text{ g}/(\text{m}^2\text{d})$ zeigt, dass die Firmenangabe der Foliendurchlässigkeit eine grobe obere Grenzen darstellt. Bei der Folie MF1 ist ein Vergleich der Durchlässigkeiten nicht möglich, da die Durchlässigkeit nach Herstellerangabe bei einem anderen Klima ($38 \text{ }^\circ\text{C} / 90 \text{ \% r.F.}$) bestimmt wurde. Die Folie MF2 weist mit einer ermittelten Flächendurchlässigkeit von $0,0086 \text{ g}/(\text{m}^2\text{d})$ einen etwas höheren Wert auf als die Herstellerangabe von $0,005 \text{ g}/(\text{m}^2\text{d})$, die bei gleichen Klimabedingungen von $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ \% r.F.}$ gemessen wurde. Die Foliendurchlässigkeit liefert zumindest einfache Anhaltspunkte zur Abschätzung der Wassergehaltszunahme. Voraussetzung dabei ist, dass die Foliendampfdurchlässigkeit bei einem für die jeweilige Anwendung typischen Klima ermittelt wurde.

4.3.2.2 Einfluss der Luft auf den Druckanstieg

In Kapitel 4.3.1.1 wurden Druckanstiege bei niedriger relativer Luftfeuchte gemessen (15 % r.F.) und daraus die Flächen- und Längendurchlässigkeit für Luftgase ermittelt (der Einfluss von Wasserdampf auf den Druckanstieg kann bei 15 % r.F. näherungsweise vernachlässigt werden). Umgekehrt lassen sich daraus die Druckanstiege für beliebige Paneelgrößen berechnen. Anhand der ermittelten Luftdurchlässigkeiten sollen nun folgende Fragen diskutiert werden:

1. Welche Druckanstiege treten bei typischen VIP-Abmessungen auf?
2. Welche Wärmeleitfähigkeitsanstiege sind aufgrund der eindringenden Luftgase zu erwarten?
3. Lassen sich die ermittelten Flächendurchlässigkeiten mit der Foliendurchlässigkeiten der Hersteller bzw. die Längendurchlässigkeiten mit den theoretisch für die Siegelnaht zu erwartenden Längendurchlässigkeit vergleichen?

Tabelle 4-14 enthält Druckanstiegsraten und die Druckanstiege nach 25 Jahren, die aus den in Tabelle 4-6 angegebenen Luftdurchlässigkeiten für eine typische Paneelgröße von $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ berechnet wurden¹⁴.

Tabelle 4-14: Druckanstiege durch Luft für $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2, berechnet aus den Durchlässigkeiten bei $23 \text{ °C} / 15 \text{ % r.F.}$ (s. Tabelle 4-6).

	Folie AF	Folie MF1	Folie MF2
Druckanstiegsrate [mbar/a]	0,47	1,9	0,44
Druck nach 25 Jahren [mbar]	11,8	47,5	11,0

Nur bei der Folie MF2 treten Druckanstiegsraten über 1 mbar/a auf. Bei den Folien AF und MF1 liegen die typischen Druckanstiegsraten deutlich unter 1 mbar/a. Da auch nach Jahrzehnten der Luftdruck im VIP gegenüber dem Atmosphärendruck von 1 bar vernachlässigt werden kann, wurde der Druck nach 25 Jahren durch lineare Extrapolation berechnet. Aus den Druckanstiegsraten und den Drücken nach 25 Jahren kann mit Gleichung (2-7) die Wärmeleitfähigkeitsanstiegsrate durch eindringende Luftgase und die daraus resultierende Gaswärmeleitfähigkeit nach 25 Jahren berechnet werden.

Tabelle 4-15: Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten durch eindringende Luftgase und Wärmeleitfähigkeiten nach 25 Jahren für $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 bei konstantem Klima $23 \text{ °C} / 15 \text{ % r.F.}$.

	Folie AF	Folie MF1	Folie MF2
Druckbedingte Wärmeleitfähigkeitsanstiegsrate [$10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{a})$]	0,019	0,079	0,018
Druckbedingte Wärmeleitfähigkeitszunahme nach 25 Jahren [$10^{-3} \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$]	0,48	1,83	0,45

¹⁴ Kleinere Paneelformate als $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ sind für technische Anwendungen nur bedingt sinnvoll, da sonst Wärmebrücken im Randbereich die Dämmwirkung zu stark vermindern können. Bei größeren Paneelformaten reduziert sich der Druckanstieg. Insofern stellen die für die Paneelgröße $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ berechneten Druckanstiege ein obere Abschätzung für real eingesetzte VIPs dar.

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖÖE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 77

Die Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten durch eindringende Luftgase sind relativ niedrig. So sind nach 25 Jahren die Wärmeleitfähigkeiten bei $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ großen VIPs mit den Folien MF1 um ca. 45 % auf $5,8 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ bzw. für VIPs mit den Folien AF und MF2 nur um ca. 12 % auf $4,5 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ angestiegen. Interessant ist ein Vergleich mit den Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten durch eindringenden Wasserdampf. Wie der Vergleich der Tabelle 4-13 mit Tabelle 4-15 zeigt, sind bei VIPs mit Aluminiumverbundfolie die feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten kleiner als die -anstiegsraten durch eindringende Luftgase, während bei den VIPs mit metallisierten Folien die feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeitsanstiegsraten größer sind. Zu beachten ist allerdings, dass die feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeit mit der Zeit langsamer ansteigt und einen asymptotischen Wert von ca. $3 \cdot 10^{-3} \text{ W/(mK)}$ erreicht. Aber selbst nach 25 Jahren ist bei den VIPs mit metallisierten Folien der feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeitsanstieg größer als der luftbedingte. Die Untersuchungen haben gezeigt, dass der Feuchteinfluss auf die Wärmeleitfähigkeit bei VIPs mit pyrogener Kieselsäure unbedingt berücksichtigt werden muss. Da der Wassergehaltsanstieg stark von den Klimabedingungen abhängt, wird der Wärmeleitfähigkeitsanstieg stark von den klimatischen Bedingungen der jeweiligen Anwendung beeinflusst.

Die Anstiege der beiden wichtigsten Einflussgrößen auf die Wärmeleitfähigkeit, Gasdruck und der Wassergehalt, hängen wesentlich von der Folienqualität und von der Siegelnahtqualität ab. Eine wichtige Frage ist nun, ob die ermittelten Flächen- und Längendurchlässigkeiten für Luft mit den Folierendurchlässigkeiten laut Herstellerangabe (zum Vergleich s. Tabelle 3-3 und Tabelle 4-4), und den theoretischen Längendurchlässigkeit des Siegelnahtmaterials vergleichbar sind (für die Wasserdampfdurchlässigkeit wurde dies im Kapitel 4.3.2.1 bereits diskutiert). Wenn ein Zusammenhang besteht, dann lassen sich aus den Folien- und Materialdaten die Durchlässigkeiten und die Druckanstiege rechnerisch abschätzen. Zu beachten ist dabei, dass bei den Herstellerangabe meist keine Luftdurchlässigkeit, sondern eine Sauerstoffdurchlässigkeit für die Folie angegeben ist. Da für zahlreiche Kunststoffe, u.a. für PET und PE, die Stickstoffdurchlässigkeit ungefähr ein Viertel der Sauerstoffdurchlässigkeit beträgt [Nen1994] und dies in etwa dem Kehrwert des Verhältnisses vom Stickstoff- zum Sauerstoffanteil der Luft entspricht, ist es möglich, Luft- oder Sauerstoffdurchlässigkeit näherungsweise miteinander zu vergleichen.

Die Sauerstoffdurchlässigkeiten der Folien AF und MF2 liegen unterhalb von einem tausendstel $\text{cm}^3(\text{STP})/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$. Dies führt bei 1 cm dicken VIPs zu Druckanstiegen unter 0,1 mbar/a und kann mit den hier durchgeführten Messverfahren und den vorhandenen Messschwankungen nicht aufgelöst werden, was sich im Rahmen der Messungen bestätigt hat. Die Sauerstoffdurchlässigkeit der Folie MF1 liegt bei $0,07 \text{ cm}^3(\text{STP})/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ und ist damit eine Größenordnung höher als die gemessene Luftdurchlässigkeit von $0,008 \text{ cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$. Auf Nachfrage beim Hersteller stellte sich heraus, dass die Angabe von $0,07 \text{ cm}^3(\text{STP})/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ nur einen groben oberen Grenzwert darstellt. Es handelt sich bei der Folie um eine kostengünstig hergestellte Folie mit deutlichen Schwankungen der Durchlässigkeit. Laut Hersteller kann die Folie auch Durchlässigkeiten im Bereich bis 0,01

$\text{cm}^3(\text{STP})/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ aufweisen [Jac2003], womit sich eine bessere Übereinstimmung mit der gemessenen Luftdurchlässigkeit ergeben würde.

Je kleiner die Flächendurchlässigkeit, um so mehr bestimmt die Längendurchlässigkeit den Druckanstieg. Bei allen Folien, die in der Klimakammer gelagert waren, war das Siegelmaterial LD-PE mit einer Schichtdicke von 50 μm . Alle Folien wurden auf gleiche Art mit einer ca. 10 mm breiten Handsiegelzange um den VIP-Kern herum versiegelt. Mit einer Permeabilität für Luftgase von 8,5 $\text{cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm}/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ [Nen1994] lässt sich mit Gleichung (2-43) eine Längendurchlässigkeit für Luft von $0,85 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3(\text{STP})/(\text{m} \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ berechnen. Die Längendurchlässigkeiten von VIPs mit den Folien AF und MF2 liegen mit $1,5 \cdot 10^{-3}$ und $1,3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/(\text{m} \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$ etwas höher (möglicherweise durch Einflüsse des Siegelprozesses), aber in der gleichen Größenordnung. Überraschend ist die deutlich höhere Längendurchlässigkeit, die bei Umhüllungen mit der Folie MF1 auftreten. Obwohl alle Umhüllungen aus LD-PE bestehen, die gleiche Siegelnahtbreite und -dicke aufweisen und unter gleichen Bedingungen gefertigt wurden, ist die Längendurchlässigkeit bei Umhüllungen mit der Folie MF1 um einen Faktor 3 bis 4 größer als bei den Folien AF und MF2. Möglicherweise wird eine Erhöhung der Durchlässigkeit des LD-PE durch Beifügen von Additiven zur Verbesserung des Siegelprozesses verursacht [Jac2003]. Eine andere Ursache kann eine Schädigung der anorganischen Sperrschicht durch mechanische Beanspruchung im Bereich der Kanten sein. Gerade bei der Folie MF1 würde sich eine Schädigung der Sperrschicht stärker auswirken, da bei der Folie MF1 PP als Substratfolie verwendet wird, das eine hohe Luftdurchlässigkeit aufweist (um einen Faktor 20 bis 80 größer als bei PET [Lan1998]). Die tatsächliche Ursache für die erhöhte Längendurchlässigkeit konnte nicht ermittelt werden. Die Messungen zeigen aber, dass sich die Durchlässigkeiten nicht immer direkt aus Materialdaten ableiten lassen. Hierzu sind Messungen an VIPs erforderlich, die unter Produktionsbedingungen gefertigt werden.

Während z.B. für Verpackungsfolien im Lebensmittelbereich umfassende Untersuchungen vorliegen, wurden bisher die speziellen Folien (AF, MF) als gefertigte VIP-Umhüllung nicht umfassend untersucht. Im Rahmen von Tagungen der Vacuum Insulation Association oder im Rahmen des IEA-Task Annex 39 HiPTI (High-Performance Thermal Insulation) wurden erste Ergebnisse vorgestellt und teilweise veröffentlicht. Untersuchungen zum Einfluss des Klimas und der Paneelgröße wurden z.B. in [Bru2003] aufgezeigt. So wird auch in dieser Arbeit ein deutlicher Einfluss der relativen Luftfeuchte auf den Druckanstieg festgestellt. Auch wurde bei einer metallbedampften Folie ein deutlicher Einfluss der Paneelgröße auf den Druckanstieg festgestellt, während die Massenzunahme weniger stark von der Paneelgröße beeinflusst wird. In der Tendenz stimmen die Messungen mit den hier vorgestellten Ergebnissen überein.

4.3.2.3 Einfluss von Luft und Wasserdampf auf den Druckanstieg

Bisher wurde der Druckanstieg durch Luftgase, basierend auf den Messungen bei 23 °C / 15 % r.F., und der Dampfdruckanstieg, abgeschätzt aus den Massenzunahmen bei 23 °C / 75 % r.F., separat betrachtet. Anhand der Druckanstiegsmes-

4.3 EINFLUSS DER VIP-GRÖÖE AUF DRUCK- UND MASSENANSTIEG 79

sungen bei 23 °C / 75 % r.F. lassen sich diese Druckanstiege miteinander vergleichen. Da bei den Druckanstiegsmessungen der Gesamtdruck gemessen wird, setzt sich der Druckanstieg bei 23 °C / 75 % r.F. (und die daraus ermittelten Durchlässigkeiten) aus Luft und Wasserdampf zusammen.

Welcher Anteil Luft und Wasserdampf ist, lässt sich durch folgenden Vergleich abschätzen. Dazu wurden in Tabelle 4-16 die Druckanstiegsraten für 20 x 20 x 1 cm³ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 eingetragen, die aus den Druckmessungen bei 23 °C / 15 % r.F. und bei 23 °C / 75 % r.F. ermittelt wurden. Da die VIPs bei 23 °C / 75 % r.F. 0,75 cm dick waren, wurden die Druckanstiegsraten zum direkten Vergleich auf 1 cm dicke VIPs umgerechnet. Zusätzlich sind die Dampfdruckanstiege, die aus den Massenzunahmen bei 23 °C / 75 % r.F. (s. Tabelle 4-7) für 20 x 20 x 1 cm³ große VIPs berechnet wurden, angegeben.

Tabelle 4-16: Druckanstiegsraten für 20 x 20 x 1 cm³ große VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2, gemessen bei 23 °C / 15 % r.F. und bei 23 °C / 75 % r.F. und berechnet aus den bei 23 °C / 75 % r.F. gemessenen Massenzunahmen. Zusätzlich sind die Standardabweichungen, ermittelt den aus an jeweils 3 Paneelen gemessenen Anstiegsraten, angegeben

Druckanstiegsrate [mba/a]	Folie AF	Folie MF1	Folie MF2
gemessen bei 23 °C / 15 % r.F.	1,2 ± 0,1	4,2 ± 0,3	1,1 ± 0,2
berechnet aus gemessenen Massenzunahmen bei 23 °C / 75 % r.F.	0,10 ± 0,06	6,6 ± 0,4	2,0 ± 0,2
Σ Zeile 2 + Zeile 3	1,3 ± 0,1	10,8 ± 0,5	3,1 ± 0,3
gemessen bei 23 °C / 75 % r.F.	1,0 ± 0,2	12,2 ± 0,2	3,9 ± 0,5

Während bei der Folie AF der Druckanstieg durch Wasserdampf nahezu vernachlässigt werden kann und sich die Druckanstiege bei 15 % r.F. und 75 % r.F. nicht wesentlich unterscheiden, sind bei VIPs mit metallisierten Folien die Gesamtdruckanstiege bei 23 °C / 75 % r.F. deutlich größer als bei 15 % r.F.. Wie aus den Dampfdruckanstiegsraten, die aus den Massenzunahmen bei 23 °C / 75 % r.F. berechnet wurden, ersichtlich ist, wird ein beträchtlicher Teil des Gesamtdruckanstiegs bei 75 % r.F. durch Wasserdampf verursacht. Der vom Wasserdampfdruck verursachte Druckanstieg beträgt bei den metallisierten Folien und der betrachteten Paneelgröße von 20 x 20 x 1 cm² ungefähr die Hälfte des gesamten Druckanstiegs. Bei größeren Paneelformaten nimmt der Luftdruckanstieg, der bei den hier untersuchten Folienumhüllungen vor allem durch eine Längendurchlässigkeit verursacht wird, ab, während der über die Fläche eindringende Wasserdampfdruckanstieg mit zunehmender Paneelgröße konstant bleibt. Somit nimmt bei größeren Paneelen der Anteil des Wasserdampfdruckanstiegs am Gesamtdruckanstieg zu. Betrachtet man bei den VIPs mit metallisierten Folien die Summen aus den durch die Luftgase bei 23 °C / 15 % r.F. und aus der Massenzunahme bei 23 °C / 75 % r.F. verursachten Druckanstiegsrate, dann sind diese Summen um etwa

20 bis 30 % niedriger als die bei 23 °C / 75 % r.F. gemessenen Druckanstiegsraten. Die genauen Ursachen für diese etwas höheren Druckanstieg bei 23 °C / 75 % r.F. sind nicht bekannt. Mögliche Ursachen sind unbekannte Einflüsse auf die Messung, z.B. durch unterschiedliche Fertigungsqualität, oder eine zu geringe rechnerische Abschätzung des wasserdampfbedingten Druckanstieg. Möglich ist auch, dass die Luftdurchlässigkeit von der Luftfeuchte selbst abhängig ist (Aufweitung der makromolekularen Struktur der Kunststoffe durch H₂O [Lan1998]), so dass ein sich ein Teil des Druckanstieges bei 23 °C / 75 % r.F. auf eine erhöhte Luftdurchlässigkeit, im Vergleich zur Luftdurchlässigkeit bei 23 °C / 15 % r.F., zurückführen ließe. Insgesamt ist festzustellen, dass die Druckanstiege folienumhüllter VIPs aus pyrogener Kieselsäure bei hohen Luftfeuchte deutlich höher sind als bei trockener Luft, wobei ein wesentlicher Anteil des erhöhten Druckanstiegs auf eindringenden Wasserdampf zurückzuführen ist, der nicht vollständig adsorbiert wird.

4.3.2.4 Bewertung des Einflusses der Paneelgröße

Insgesamt zeigen die Untersuchungen, dass sowohl eindringende Feuchte als auch eindringende Luft zum Anstieg der Wärmeleitfähigkeit beitragen. Beide Effekte müssen berücksichtigt werden. Der Unterschied zwischen Wasserdampf und Luft ist, dass Wasserdampf vorwiegend über die Fläche in das VIP eindringt und somit der Anstieg der feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeit nur von der Paneeldicke, aber nicht von der Paneelgröße abhängt. Bei metallisierten Folien ist darüber hinaus der Wassergehaltsanstieg so groß, dass die feuchtebedingte Wärmeleitfähigkeit im Lauf von Jahren bzw. Jahrzehnten langsamer wird und einem asymptotischen Wert zustrebt. Im Unterschied zum Wasserdampf dringen Luftgase über Fläche und über die Siegelnaht in das VIP ein. Der Druckanstieg und der zugehörige Wärmeleitfähigkeitsanstieg ist deswegen abhängig vom Paneelformat. Da die Drücke im VIP in der Regel klein im Vergleich zum Atmosphärendruck sind, darf der Druckanstieg linear extrapoliert werden. Bei hohen Luftfeuchten tragen Wasserdampf und Luftgase zum Druckanstieg bei, wobei, insbesondere bei metallisierten Folien, der Druckanstieg durch Wasserdampf größer sein kann als der durch Luftgase. Will man den Druckanstieg durch Luftgase bei hohen Luftfeuchte bestimmen, dann empfiehlt sich der Einsatz von Trocknungsmitteln, um den eindringenden Wasserdampf zu binden. Als schwierig erwiesen sich die Messungen bei unterschiedlichen Paneelgrößen zur Separierung der Flächen- und Längendurchlässigkeit. Bei kleinen Paneelformaten (10 x 10 cm²) scheint ein deutlicher Fertigungseinfluss vorhanden zu sein, bei größeren Paneelen sind die Druckanstiege sehr klein und schwierig zu messen. Ein besseres Druckmessverfahren wäre für genauere Untersuchungen dringend erforderlich. Neue Messverfahren, wie z.B. das va-Q-check-Verfahren [Cap2003b], sind eine wichtige Voraussetzung für eine effiziente Qualitätskontrolle des Druckanstiegs von VIPs.

4.4. Anwendung: Messung an gebäude-installierten VIPs

Wie im Kapitel 2.3.4 erläutert, lässt sich mit dem dort beschriebenen numerischen Modell bzw. mit dem zugehörigen Programm, der Druck- und Wassergehaltsanstieg in Abhängigkeit vom Folientyp, vom Paneelformat und den am VIP anliegenden Klimabedingungen berechnen. Um das Berechnungsmodell und die in dieser Arbeit ermittelten Abhängigkeiten der Foliendurchlässigkeit validieren zu können, wurden VIPs mit den Folien AF, MF1 und MF2 gefertigt, in eine speziell gefertigte Holzkonstruktion eingebaut und an einer Gebäudeaußenwand befestigt. Die VIPs wurden vierteljährlich zur Messung von Druck und Masse aus- und wieder eingebaut. Konstruktionsbedingt wurden die VIPs in den Abmessungen 34 x 64 x 1,3 cm³ gefertigt. Je Folientyp wurden 3 VIPs gefertigt. Auf Vorder- und Rückseite der VIPs wurden die Klimabedingungen Temperatur und relative Luftfeuchte im Stundenintervall gemessen und aufgezeichnet. In Tabelle 4-17 sind die Jahresmittelwerte für Temperatur, relative Feuchte und der daraus berechnete mittlere Dampfdruck für die Vorder- und Rückseite der VIPs angegeben. Die Vorderseite der VIPs entspricht in der eingebauten Anordnung der Außenseite der Wandkonstruktion und die Rückseite ist dem Innenraum zugewandt.

Tabelle 4-17: Jahresmittelwerte der Temperatur, relativen Feuchte und des Dampfdrucks an Vorder- und Rückseite von VIPs, die in eine Holzkonstruktion eingebaut und an die Außenwand eines Gebäudes befestigt wurden (Vorderseite = Außenklima, Rückseite = „Innen“-Klima zwischen VIP und Wand)

T _{innen} [°C]	T _{außen} [°C]	φ _{innen} [%]	φ _{außen} [%]	p _{D,innen} [mbar]	p _{D,außen} [mbar]
17,9	10,7	58,6	75,3	12,7	10,0

Sowohl die Luftdurchlässigkeit als auch die Dampfdurchlässigkeit weisen eine Abhängigkeit von der relativen Feuchte auf, deren funktionale Abhängigkeit nicht bekannt ist. Deswegen wurden Simulationsrechnungen mit den Luft- und Dampfdurchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. (Tabelle 4-6 und Tabelle 4-9) und bei 23 °C / 75 % r.F. (Tabelle A-3 und Tabelle 4-8) durchgeführt. Da die bei 23 °C / 75 % r.F. ermittelte Flächendurchlässigkeit überwiegend auf den eindringenden Wasserdampf zurückzuführen ist und eine Flächendurchlässigkeit für Luft nicht bekannt ist, wird bei 23 °C / 75 % r.F. die Flächendurchlässigkeit bei 23 °C / 15 % für die Berechnung der Druckanstiege durch trockene Luft angenommen (diese ist nur bei der Folie MF1 größer 0). Der Temperatureinfluss wird bei der Luftdurchlässigkeit mit dem Arrheniusansatz (s. Gleichung (2-39)) und den Aktivierungsenergien der Folienumhüllung (s. Tabelle 4-1) berücksichtigt. Der Atmosphärendruck wird als konstant (1 bar) angenommen. Ein Temperatureinfluss auf die Dampfdurchlässigkeit kann vernachlässigt werden. Der Dampfdruck variiert entsprechend den an der Umhüllung anliegende Klimabedingungen φ und T mit $p_D = \varphi \cdot p_{D,sat}(T)$.

In Abbildung 4-24 und Abbildung 4-25 sind Druck- und Wassergehaltsanstiege für die in eine Holzkonstruktion eingebauten VIPs mit den Folien MF1 und MF2, er-

mittelt aus Messung und Simulation, dargestellt. Die gemessenen Druckwerte wurden rechnerisch um den Wasserdampfeinfluss korrigiert ($p_L = p_{\text{gemessen}} - \varphi \cdot (X_w) \cdot p_{D,\text{sat}}(T)$), um sie mit den aus der Simulation berechneten Luftdruckanstiegen vergleichen zu können. Die korrigierten Druckwerte sind in Abbildung 4-24 eingetragen. Bei den gemessenen Druck- und Wassergehaltszunahmen sind die Mittelwerte aus den Messungen an drei identischen VIPs und die zugehörige Standardabweichung angegeben. Bei den berechneten Kurven sind Fehlerbalken eingezeichnet, die aus den Unsicherheiten der jeweiligen Längen- und Flächen-durchlässigkeiten resultieren.

Die aus den Messungen ermittelten Luftdruckanstiege sind etwas größer als die Druckanstiege, die sich aus den Simulationsrechnungen ergeben, wenn für die Berechnung die Luftdurchlässigkeiten bei hohen Luftfeuchten (75 % r.F.) angenommen werden. Hohe Luftfeuchten bis 75 % r.F. wurden im Mittel an den VIPs gemessen. Mit den Luftdurchlässigkeiten bei niedrigen Luftfeuchten ergeben sich zu niedrige Druckanstiege. Für die Praxis empfiehlt es sich daher, die Durchlässigkeit bei praxisüblichen Luftfeuchten zu bestimmen. Dabei stellt sich das Problem, dass Druckanstiegsmessungen bei hohen Luftfeuchten vom eindringenden Wasserdampf beeinflusst werden. Indem man Trocknungsmittel in die VIPs einbringt, lässt sich der Wasserdampf chemisch binden, so dass nur der Luftdruckanstieg gemessen wird. Die eingedrungene Wassermenge lässt sich über Wägung bestimmen.

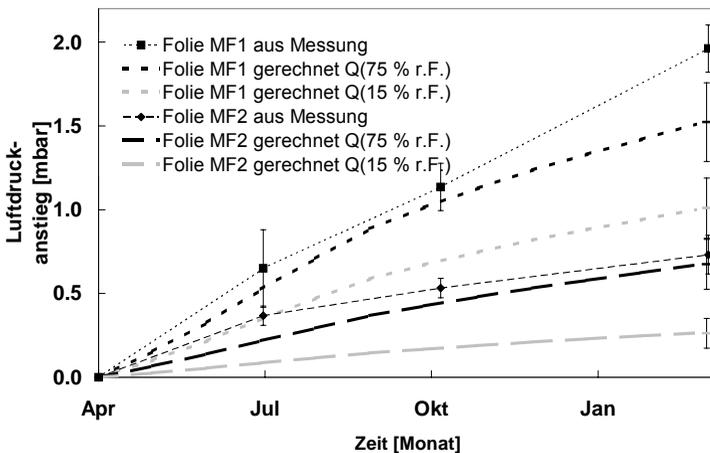


Abbildung 4-24: Vergleich der gemessenen und berechneten Luftdruckanstiege als Funktion der Zeit von $64 \times 34 \times 1,3 \text{ cm}^3$ großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2, die in eine Holzkonstruktion eingebaut und an eine Außenwand befestigt waren. Die Berechnungen erfolgten unter Berücksichtigung der Klimabedingung und basierend auf den Luftdurchlässigkeiten, die bei hohen und niedrigen relativen Luftfeuchten (Q(75 % r.F.) bzw. Q(15 % r.F.)) gemessen wurden.

In der Simulation sind die Einflussparameter Panelgröße, Temperatur berücksichtigt und der Einfluss der Luftfeuchte wird über zwei Varianten (hoch / niedrig)

veranschaulicht. Insgesamt wird eine für praktische Anwendungen zufriedenstellende Übereinstimmung erreicht. Als mit den Messungen begonnen wurde, waren die verschiedenen Einflussparameter nicht bekannt. So wurden z.B. an $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$ großen VIPs mit der Folie MF1 bei $23 \text{ }^\circ\text{C} / 75 \text{ \% r.F.}$ Druckanstiege über 10 mbar gemessen. Diese wurden fälschlicherweise zunächst als Luftdruckanstieg interpretiert. Tatsächlich wurden unter praktischen Bedingungen Luftdruckanstiege um 2 mbar ermittelt (bei $34 \times 64 \times 1,3 \text{ cm}^3$). Dies zeigt, wie wichtig eine genaue Kenntnis der Einflussparameter ist.

Abbildung 4-25 zeigt die an den VIPs in der Holzkonstruktion gemessenen und berechneten Wassergehaltszunahmen. Die gemessenen Wassergehaltsanstiege liegen zwischen den berechneten Simulationsverläufen, die auf Basis der bei $23 \text{ }^\circ\text{C} / 15 \text{ \% r.F.}$ und bei $23 / 75 \text{ \% r.F.}$ ermittelten Wasserdampfdurchlässigkeiten berechnet wurden. Da im Mittel hohe Luftfeuchten bis 75 \% r.F. an den VIPs anliegen, sollten die Messungen tendenziell näher am Simulationsverlauf bei hohen Luftfeuchten liegen. Dies weist darauf hin, dass das Berechnungsmodell noch verbessert werden muss. Wichtig wäre die Kenntnis der funktionalen Abhängigkeit der Wasserdampfdurchlässigkeit von der relativen Feuchte, um den Einfluss der Klimabedingungen besser berücksichtigen zu können. So liegen z.B. im Winter dauerhaft hohe Luftfeuchten um 90 \% r.F. am VIP an, aber der Dampfdruck als treibendes Potenzial ist aufgrund der niedrigen Temperaturen sehr klein ($< 5 \text{ mbar}$). Im Sommer dagegen treten hohe Dampfdrücke über 20 mbar auf, wobei die Luftfeuchten vor allem bei hohen Temperaturen auf unter 50 \% r.F. abfallen. Die Temperatur beeinflusst den Dampfdruck bzw. die Luftfeuchte und somit die Dampfdurchlässigkeit.

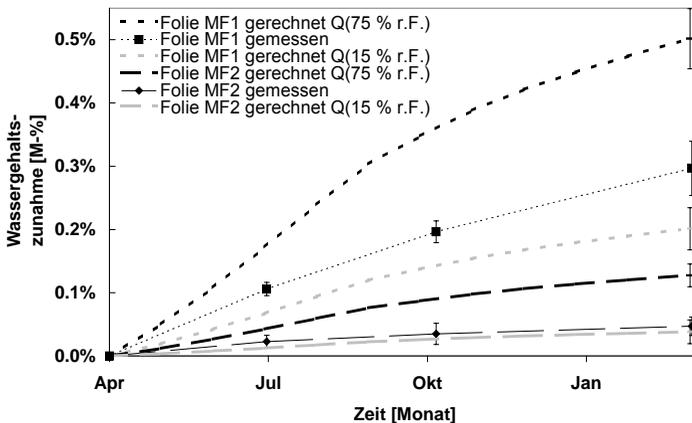


Abbildung 4-25: Vergleich der gemessenen und berechneten Wassergehaltsanstiege als Funktion der Zeit von $64 \times 34 \times 1,3 \text{ cm}^3$ großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2, die in eine Holzkonstruktion eingebaut und an eine Außenwand befestigt waren. Die Berechnungen erfolgten unter Berücksichtigung der Klimabedingung und basierend auf den Luftdurchlässigkeiten, die bei hohen und niedrigen relativen Luftfeuchten ($Q(75 \text{ \% r.F.})$ bzw. $Q(15 \text{ \% r.F.})$) gemessen wurden.

Die Wasserdampfdurchlässigkeiten, die bei 23 °C / 75 % r.F. gemessen wurden, ergeben bei 1,3 cm dicken VIP Wassergehaltsanstiege von 1,1 M-%/a für VIPs mit der Folie MF1 bzw. 0,3 M-%/a für VIPs mit der Folie MF2. Die unter realen Klimabedingungen gemessenen Wassergehaltszunahmen sind um einen Faktor 4 bis 5 niedriger. Dies zeigt, wie wichtig eine genaue Abschätzung des Klimaeinflusses ist. Der relativ hohe Anstieg der feuchtebedingten Wärmeleitfähigkeit, wie er in Kapitel 4.3.2.1 bei einem Klima von 23 °C / 75 % r.F. abgeschätzt wurde, würde entsprechend niedriger ausfallen. Dies ist bei der Abschätzung der Lebensdauer von VIPs in praktischen Anwendungen, z.B. im Baubereich, unbedingt zu berücksichtigen.

5 Ausblick

In dieser Arbeit wurde der Stoff- und Wärmetransport in VIPs aus pyrogener Kieselsäure quantifiziert. Insbesondere wurde der Einfluss auf den stationären und instationären Wärmetransport untersucht. Darüber hinaus wurde der Stoffeintrag in VIPs, d.h. die Luft- und Wasserdampfdurchlässigkeiten von Folienumhüllungen, vermessen und modelliert. Folgende Anregungen für die Zukunft lassen sich aus dieser Arbeit ableiten:

- Bezüglich des Wärmetransports in feuchten VIPs wäre es interessant, die einzelnen Transportmechanismen sowohl im instationären als auch im stationären Zustand zu ermitteln. Die Messung der Wassergehaltsverteilung und des Druckgradienten während der Messung des Wärmetransports könnten Ausschluss über die beteiligten Transportprozesse liefern. Durch Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen lassen sich ebenfalls Rückschlüsse auf die verschiedenen Transportmechanismen ableiten, wenn deren Temperaturabhängigkeiten bekannt sind. Eine genaue Kenntnis der Temperaturabhängigkeit ist wichtig, um für Anwendungen bei erhöhten oder niedrigen Temperaturen (z.B. Warmwasserspeicher, Tiefkühlanwendungen) die Wärmeleitfähigkeiten zu kennen.
- Aufgrund der geringen zeitlichen Druck- und Massezunahmen und bedingt durch die Auflösung der verwendeten Messverfahren waren Zeiträume von annähernd einem Jahr für die Bestimmung der Durchlässigkeiten erforderlich. Die Entwicklung genauerer und schnellerer Messverfahren ist anzustreben. Während in dieser Arbeit die VIPs „normal“ gefertigt und vermessen wurde, könnten beschleunigte Messverfahren durch Modifizierung der VIPs erfolgen. Möglich wäre z.B. die Einbringung von Druck- und Feuchtesensoren oder die Substitution eines Großteils der Kernmaterials durch nicht-poröse Materialien, da eine Verringerung des Porenvolumens zu einem schnelleren Druckanstieg führt. Allerdings muss dabei darauf geachtet werden, dass die Modifizierung nicht die Durchlässigkeiten der Umhüllung beeinflusst. In Zukunft sind weitere Verbesserungen in der Durchlässigkeit der Folienumhüllungen zu erwarten [Rai2003]. Je dichter die Folienumhüllungen umso höher werden die Anforderungen an die Messverfahren.
- Für Langzeitanwendungen wurden bisher bei folienumhüllten VIPs vor allem die pyrogene Kieselsäure in Erwägung gezogen, da bei anderen Materialien wie PUR-Schaum oder Glasfaserboards, aufgrund der groben Porenstruktur im Vergleich zur pyrogenen Kieselsäure, die Wärmeleitfähigkeit durch die eindringenden Gase zu schnell ansteigt. Mit dichteren Folienumhüllung und eventuell durch Einsatz von Trocknungsmittel und Getter für trockene Luftgase, werden in Zukunft auch andere Kernmaterialien für Langzeitanwendungen, wie z.B. bei Anwendungen im Baubereich, einsetzbar.
- Ob und inwieweit sich die unter Laborbedingungen gemessenen Druck- und Massenanstiege auf praktische Anwendungsbedingungen übertragen lassen, muss durch weitere Untersuchungen von VIPs, die unter realen Anwendungsbedingungen getestet werden, validiert werden.

- Alle bisherigen Abschätzung des Anstiegs von Druck, Wassergehalt und Wärmeleitfähigkeit gehen davon aus, dass sich die Durchlässigkeit der Folienumhüllungen im Anwendungszeitraum nicht ändert. Da Kunststoffe altern können und lange Anwendungszeiträume angestrebt werden (z.B. Jahrzehnte im Baubereich) ist die Annahme zeitlich unveränderter Durchlässigkeiten zu überprüfen. Sollten nennenswerte Alterungseffekte auftreten, müssen die bisherigen Abschätzungen korrigiert werden. Um genaue Langzeitvorhersagen geben zu können, sind Untersuchungen zum Alterungsverhalten der Folienumhüllungen zwingend erforderlich.

ANHANG

ANHANG A: Gemessene Druckanstiege und Massenzunahmen in den Klimaboxen

Tabelle A-1: Die aus den Messungen an den VIPs in den Klimaboxen bei unterschiedlichen Klimabedingungen ermittelten Druckanstiegsraten.

Gesamtdruckanstiegsrate [mbar/a]					
Klima	25 °C / 14 mbar	25 °C / 75 % r.F.	45 °C / 14 mbar	45 °C / 75 % r.F.	65 °C / 14 mbar
Paneelformat (10 x 10 x 1) cm³					
Folie AF	5,3	8,0	12,9	16,9	16,0
Folie MF1	16,0	25,0	43,2	66,9	67,2
Folie MF2	2,5	5,3	3,8	14,6	8,2
Paneelformat (20 x 20 x 1) cm³					
Folie AF	2,6 ± 0,1	3,7 ± 0,3	5,6 ± 0,9	8,0 ± 1,6	7,9 ± 2,2
Folie MF1	7,2	12,6	28,4	40,9	36,4
Folie MF2	1,0 ± 0,1	2,8 ± 0,4	1,8 ± 0,4	8,2 ± 1,1	3,2 ± 0,4

Tabelle A-2: Die aus den Messungen an den VIPs in den Klimaboxen bei unterschiedlichen Klimabedingungen ermittelten Gesamtdurchlässigkeiten für Wasserdampf pro Fläche F.

Q³_{D,gesamt}/F [g/(m²d)]					
Klima	25 °C / 14 mbar	25 °C / 75 % r.F.	45 °C / 14 mbar	45 °C / 75 % r.F.	65 °C / 14 mbar
Paneelformat (10 x 10 x 1) cm³					
Folie AF	0,001	0,002	0,0007	0,0055	0,0008
Folie MF1	0,0096	0,036	0,0093	0,078	0,0074
Folie MF2	0,0015	0,018	0,0027	0,041	0,0032
Paneelformat (20 x 20 x 1) cm³					
Folie AF	0,0005 ±0,0003	0,0011 ±0,0005	0,0008 ±0,0003	0,0039 ±0,002	0,0011 ±0,0006
Folie MF1	0,0067	0,029	0,010	0,084	0,0057
Folie MF2	0,0011 ±0,0004	0,011 ±0,003	0,0013 ±0,0004	0,027 ±0,005	0,0009 ±0,0005

ANHANG B: Erweitertes Durchlässigkeitsmodell

Regressionsanalysen liefern die bestmögliche Lösung für ein vorgegebenes Modell. Bei der Analyse der Durchlässigkeit wurde davon ausgegangen, dass Gase nur über die Fläche oder entlang des Umfangs (Siegelnaht) in das VIP eindringen. Obwohl die Streuung der bisher gewonnenen Messdaten zu groß ist, um zuverlässige Aussagen über die Leckagepfade zu erhalten, so soll hier eine weitere Möglichkeit angesprochen werden. Ein modifizierter Modellansatz ist erforderlich, wenn neben den Haupteffekten über Fläche und Siegelnaht z.B. eine von der Paneelgröße unabhängige erhöhte Durchlässigkeit im Bereich der Ecken auftritt.

Falls eine punktartige Durchlässigkeit $Q_{P, \text{Luft}}$ vorhanden ist, muss Gleichung (4-2) zu Gleichung (A-1) erweitert werden.

$$\frac{Q_{\text{Luft, ges}}}{F} = Q_{\text{Luft, F}} + Q_{\text{Luft, L}} \cdot \frac{2}{K} + Q_{\text{Luft, P}} \cdot \frac{1}{2 \cdot K^2} \quad (\text{A-1})$$

Mit $x = 2/K$ ergibt sich ein Polynom zweiten Grades als Modellgleichung für die flächenbezogene Gesamtdurchlässigkeit. Mit Gleichung (A-1) lassen sich die flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeiten fitten. Abbildung A-1 zeigt den Unterschied zwischen einer linearen Regression nach Gleichung (4-2) und nach Gleichung (A-1) über die flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. von unterschiedlich großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2.

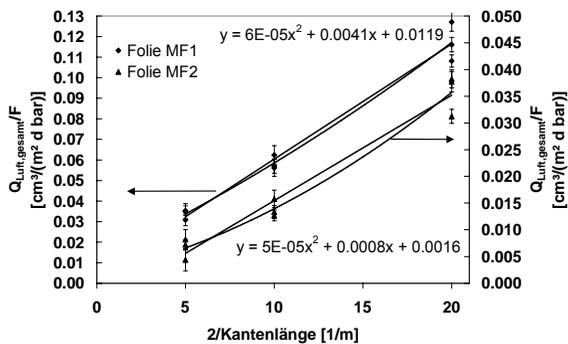


Abbildung A-1: flächenbezogene Gesamtdurchlässigkeit von unterschiedlich großen, quadratischen VIPs mit den Folien MF1 und MF2, aufgetragen über $2/K$ antenlänge. Zusätzlich sind die Fit-Kurven aus der Regression nach Gleichung (4-2) und Gleichung (A-1) eingezeichnet.

Die Abweichung zwischen Gerade und Parabel sind bei beiden Folien nicht groß. Dennoch ändern sich die Flächen- und Längendurchlässigkeiten deutlich, wenn eine vom Paneelformat unabhängige Durchlässigkeit $Q_{P, \text{Luft}}$ berücksichtigt wird. So erhöht sich, im Vergleich zur Regression nur über Fläche und Umfang, bei der Folie MF1 die Flächendurchlässigkeit um das 2,6-fache (von 0,0045 $\text{cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$) auf 0,012 $\text{cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$), während sich die Längendurchlässigkeit um etwa ein Viertel reduziert. Bei der Folie MF2 halbiert sich die Längendurchlässigkeit annähernd und zugleich erhält man eine physikalisch sinnvolle, positive Flächendurchlässigkeit von 0,0016 $\text{cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$. Anhand dieser kurzen Betrachtung soll gezeigt werden, dass eine punktartige Durchlässigkeit die Auswertung nennenswert beeinflussen kann, insbesondere, wenn an kleinen Paneelen gemessen wird (bei kleinen Paneelen hat eine punktartige Durchlässigkeit einen stärkeren Einfluss auf den Druckanstieg ($dp/dt \sim 1/V$)). Unter diesem Aspekt empfiehlt sich die Messung an größeren, praxisüblichen Paneelformaten, wobei allerdings bei größeren Formaten der Druckanstieg so klein werden kann, dass er erst nach sehr langen Messzeiten aufgelöst werden kann.

ANHANG C: Bestimmung des molekularen Diffusionskoeffizienten

Abbildung A-2 zeigt die Messapparatur zur Bestimmung des molekularen Diffusionskoeffizienten. Der Aufbau besteht aus einem Behälter, in dem sich eine gesättigte Wasser-Salz-Lösung befindet. Abhängig von der Salzart stellt sich im Volumen unterhalb der Probe eine bestimmte relative Feuchte und Dampfdruck ein. Die Probe wird auf den Behälter aufgelegt und dampf- und luftdicht mit dem Behälter verklebt. Der Behälter befindet sich auf einer Waage und der gesamte Messaufbau ist in einer Vakuumkammer eingebaut. Am Behälter ist ein Ventil angebracht. Das Ventil muss während des Evakuierens geöffnet sein, damit das Volumen unterhalb der Probe ebenfalls evakuiert wird (ein Druckausgleich durch das Probenmaterial wäre zu langsam und die Probe würde vom Behälter gedrückt werden). Wenn der gewünschte Enddruck erreicht ist (≤ 1 mbar), wird das Ventil geschlossen und es stellt sich im Behälter der zur Salzlösung zugehörige Dampfdruck ein. Der Wasserdampf kann nun durch die Probe diffundieren und wird an der Oberseite abgesaugt (die Pumpe läuft während der gesamten Messung, um einen Druckanstieg in der Vakuumkammer zu unterbinden). Die größte Schwierigkeit bei der Messung bereitete die Abdichtung der Proben am Rand. Eine vollständige Abdichtung konnte nicht erreicht werden. Ursache für die Undichtigkeit könnte ein Dampftransport durch die Klebeschicht sein, was zu einem zusätzlichen Massenstrom führt. Durch Messung mit dichten Platten aus Metall konnte diese Leckrate, bedingt durch die Undichtigkeit, abgeschätzt werden. Eine detaillierte Beschreibung der Messapparatur, der Messgenauigkeit und umfassende Diskussion der hier gezeigten Messungen ist in [Rei2003] zu finden.

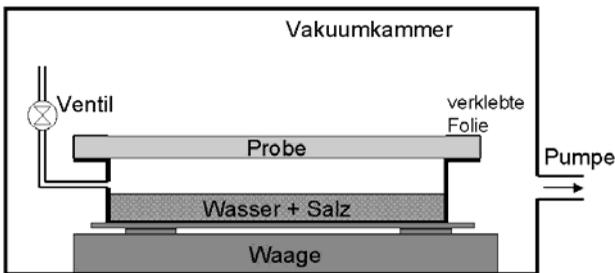


Abbildung A-2: Messapparatur zur Bestimmung des molekularen Dampfdiffusionsleitkoeffizienten von Platten aus pyrogener Kieselsäure, die in VIPs eingesetzt werden (durchströmte Probenflächen $14 \times 14 \text{ cm}^2$).

Mit der in Abbildung A-2 gezeigten Messapparatur wurde der Massenstromdichte durch eine 2 cm dicke Platte aus pyrogener Kieselsäure im Vakuum ($p_L < 1$ mbar) gemessen. Die gemessene Massenstromdichte ist in Abbildung A-3, aufgetragen über die an der Probenunterseite anliegende relative Feuchte φ_u , dargestellt.

Zieht man von der gemessenen Massenstromdichte die Leckagestromdichte ab, dann erhält man den tatsächlichen Massenstrom dm/dt pro Probenfläche. Auffallend ist der starke Anstieg Massenstromdichte bei hohen relativen Feuchten. Dieser Effekt lässt sich anhand der nachfolgenden Transportgleichung erklären.

Der stationäre Massenstrom dm/dt pro Fläche f lässt sich aus der instationären Gleichung für Flüssig- und Dampftransport ableiten [Kün1994], [Kas1988].

$$\frac{\dot{m}}{f} = \chi(w) \cdot \frac{\partial w}{\partial x} + \delta_D \cdot \frac{\partial p_D}{\partial x} = K_\varphi(\varphi) \cdot \frac{\partial \varphi}{\partial x} + \delta_D \cdot \frac{\partial p_D}{\partial x}. \quad (\text{A-2})$$

Anstelle des Wassergehalts kann die relative Feuchte als treibendes Potenzial für den Flüssigtransport verwendet werden

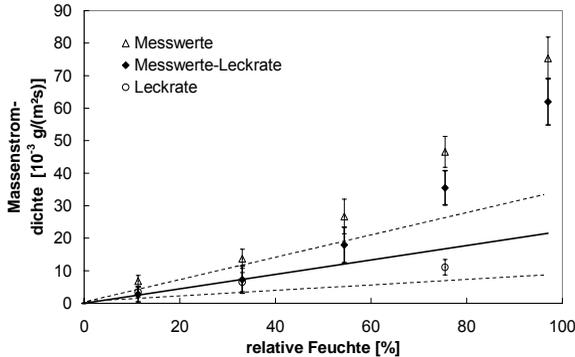


Abbildung A-3: Massenstromdichte im Vakuum ($p_L < 1\text{mbar}$) bei 20°C durch eine 2 cm dicke Platte aus pyrogener Kieselsäure in Abhängigkeit von der relativen Feuchte φ_u an der Unterseite der Platte $p_{D,u} = \varphi_u \cdot p_{D,\text{sat}}(T)$.

Bei niedrigen relativen Feuchten ist ein annähernd linearer Anstieg des Massenstromes zu erkennen, der durch Diffusion in der Gasphase hervorgerufen wird ($\chi_w = 0$ bzw. $K_\varphi = 0$). Der nichtlineare Anstieg bei hohen Luftfeuchten lässt sich als zusätzlicher Flüssigtransport erklären¹⁵. Mit zunehmender relativer Feuchte werden die Wasserschichten an der inneren Oberfläche dicker und beweglicher, so dass Oberflächendiffusion möglich wird. Mit weiter steigender Luftfeuchte tritt Kapillartransport ein. Bei welchen Feuchten welcher Transportprozess einsetzt, hängt wesentlich von der Materialstruktur ab. Oberflächendiffusion kann bereits bei relativ niedrigen Luftfeuchten ($> 30\%$ r.F) vorkommen [Kas1988], Kapillartransport beginnt mit Einsetzen der Kapillarkondensation. Betrachtet man den linearen Bereich der Gasdiffusion mit konstantem Diffusionskoeffizienten, so gilt für den Massenstrom durch die Probe (bei konstantem Diffusionskoeffizienten gilt $\partial p_D \partial x \approx \Delta p_D / \Delta x$).

$$\frac{\dot{m}_{\text{Probe}}}{F_{\text{Probe}}} = \delta_{D,\text{molekular}} \cdot \frac{\Delta p_D}{\Delta x} = \frac{D_{D,\text{molekular}} \cdot M_{w,\text{mol}}}{\mu \cdot R \cdot T} \cdot \frac{\Delta p_D}{\Delta x}. \quad (\text{A-3})$$

¹⁵ Der nichtlineare Anstieg des Massenstroms bei hohen Luftfeuchten lässt sich auch durch einen feuchteabhängigen Diffusionskoeffizienten erklären und beschreiben. Durch Untersuchungen an hydrophobierten und nichthydrophobierten Materialien wurde gezeigt, dass der Diffusionskoeffizient weitestgehend unabhängig von der relativen Luftfeuchte ist und der erhöhte Massenstrom durch Flüssigtransport erklärt werden kann [Lut1994]. Erst bei sehr hohen Luftfeuchten ($> 95\%$) wird angenommen, dass eine Kopplung zwischen Dampfdiffusion und Flüssigtransport auftritt und die Dampfdiffusion vom Wassergehalt abhängig wird

Bei den in den Messungen anliegenden Dampfdrücken (< 30 mbar) kann Molekulartransport angenommen werden. Deswegen entspricht δ_D dem molekulare Diffusionsleitkoeffizient $\delta_{D,molekular}$. Der molekulare Diffusionsleitkoeffizient $\delta_{D,molekular}$ lässt sich mit Gleichung (A-3) aus dem linearen Anstieg des Massenstromes (bis zum zweiten Messpunkt bei 33 % r.F.) bestimmen. Diese Auswertung ergibt für die pyrogene Kieselsäure einen molekularen Diffusionsleitkoeffizienten von $\delta_{D,molekular} = (2,1 \pm 1,3) \cdot 10^{-10} \text{ kg}/(\text{m}\cdot\text{s}\cdot\text{Pa})$. Aus theoretischen Überlegungen lässt sich ein oberer Wert für den Diffusionsleitkoeffizienten von $2,9 \cdot 10^{-10} \text{ kg}/(\text{m}\cdot\text{s}\cdot\text{Pa})$ ableiten (s. Kapitel 2.3.1 mit $\mu = 1$). Der gemessene Wert ist etwas niedriger als der theoretische Wert, wobei der theoretische Wert noch innerhalb der Messschwankungen liegt. Dies bedeutet, dass die pyrogene Kieselsäure eine relativ kleine Diffusionswiderstandszahl μ von ca. 1 bis 3 aufweist ($\mu = \delta_{\text{ohne Material}}(\mu=1)/\delta_{\text{mit Material}} \geq 1$). Kleine Widerstandszahlen in der Größenordnung 10^0 sind typisch für offeneporige Materialien mit hoher Porosität, was bei der pyrogenen Kieselsäure der Fall ist. Eine mittlere Abschätzung für den Feuchteleitkoeffizienten K_φ lässt sich aus Gleichung (A-2) ableiten

$$K_{\varphi,mittel} := \frac{\dot{m}_fl}{F_{Probe}} \cdot \frac{1}{\Delta\varphi/\Delta x} = \left(\frac{\dot{m}_{Probe}}{F_{Probe}} - \delta_D \cdot \frac{\Delta p_D}{\Delta x} \right) \cdot \frac{1}{\Delta\varphi/\Delta x} \quad (A-4)$$

Mit $K_{\varphi,mittel}$ lässt sich nur eine sehr grobe Abschätzung für den Flüssigtransport ableiten. Zum einen stellt die Größe nur eine einfache Mittelung dar, zum anderen wird sie aus der Differenz von Größen berechnet, die mit hohem Fehler gemessen wurden. Deswegen werden im Folgenden nur Größenordnungen betrachtet. Bei kleinen Feuchten zwischen 25 – 50 % r.F. beginnt der Flüssigtransport und $K_{\varphi,mittel}$ erreicht Werte um $10^{-5} \text{ g}/(\text{m}\cdot\text{s})$ und mit steigender Feuchte (ab ca. 70 % r.F.) treten Werte in der Größenordnung von $10^{-4} \text{ g}/(\text{m}\cdot\text{s})$ auf. Ab relativen Feuchten über 90 % werden Leitkoeffizienten von annähernd $10^{-3} \text{ g}/(\text{m}\cdot\text{s})$ erreicht.

Will man die Größenordnung eines möglichen Heat-Pipe-Effekts im VIP abschätzen, dann muss zusätzlich zum Feuchteleitkoeffizient der Gradient $d\varphi/dx$ bekannt sein. Eine Abschätzung für $d\varphi/dx$ erhält man aus den Simulationsrechnungen in Kapitel 2.3.5.2. Für $d\varphi/dx$ lässt sich eine Größenordnung um 10^1 1/m abschätzen. Für $K_{\varphi,mittel} = 10^{-5} - 10^{-3} \text{ g}/(\text{m}\cdot\text{s})$ ergibt sich somit eine Massenstromdichte von $10^{-4} - 10^{-2} \text{ g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$. Beim Heat-Pipe-Effekt ist diesem Flüssigmassenstrom ein Dampfdiffusionsstrom mit Latentwärmetransport entgegengerichtet. Diesem stationären Wärmestrom $q_{D,Diffusion}$ lässt sich eine Wärmeleitfähigkeit zuordnen ($\lambda_{Heat-Pipe} = q_{D,Diffusion} \cdot D_{Probe}/\Delta T$). Bei einer Massenstromdichte von $10^{-4} - 10^{-2} \text{ g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ würde sich ein $\lambda_{Heat-Pipe}$ von $(0,25 - 25) \cdot 10^{-3} \text{ W}/(\text{mK})$. Diese Abschätzung zeigt, dass der Heat-Pipe-Effekt, insbesondere bei hohen Wassergehalten, zu einer deutlichen Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit betragen kann. Für eine genaue Abschätzung sind weitere Untersuchungen des Flüssigtransports im VIP erforderlich.

ANHANG D: Temperaturkorrektur der Druckanstiegsmessungen an den 40 x 40 cm² großen VIPs bei 23 °C / 75 % r.F. und Bestimmung der Längen- und Flächendurchlässigkeit aus den korrigierten Druckanstiegen

In Kapitel 4.3.1.3 wurde berichtet, dass die Messungen bei 23 °C / 75 % r.F. an 40 x 40 cm² großen Paneelen durch Temperaturschwankungen bei der Druckmessung beeinflusst sind. Die Ursache der Temperaturschwankungen und eine Abschätzung des Temperatureinflusses wird im folgenden vorgestellt.

Als mit diesen Messungen bei 23 °C / 75 % r.F. begonnen wurde (die Messungen bei 23 °C / 75 % r.F. wurden zeitlich vor den Messungen bei 23 °C / 15 % r.F. durchgeführt), wurde noch angenommen, dass die pyrogene Kieselsäure aufgrund ihrer Hygroskopizität und ihrer großen inneren Oberfläche den Wasserdampf nahezu vollständig bindet. Die Temperaturabhängigkeit der trockenen Luftgase (ideales Gas) ist relativ gering und kann für unsere Messungen bei kleinen Drücken von wenigen mbar in erster Näherung vernachlässigt werden (s. Kapitel 3.1). Deswegen wurde bei der Durchführung dieser Druckmessungen noch nicht auf Temperaturkonstanz geachtet. Mit Kenntnis der Sorptionsisotherme und des gemessenen Wassergehaltes (durch eindiffundierten Wasserdampf) kann der Einfluss des Wasserdampfes abgeschätzt und gezeigt werden, dass der Wasserdampf signifikant zum Druckanstieg beiträgt (Kapitel 4.2.2.1). Aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit des Wasserdampfdrucks ($p_D = \varphi \cdot p_{D,sat}(T)$) werden die Druckmessungen abhängig von der Messtemperatur. Variiert die Temperatur zwischen einzelnen Messtagen, so sollte der Temperatureinfluss vor allem zu größeren Messschwankungen beim Druckanstieg führen. Bei den hier durchgeführten Messungen bei 23 °C / 75 % r.F. muss darüber hinaus noch berücksichtigt werden, dass die Messungen an den großen Paneelformaten von (40 x 40) cm² bei anderen Temperaturen durchgeführt wurden wie die Messungen an den kleineren Paneelen¹⁶. Je nachdem wie groß der Temperatureinfluss tatsächlich ist, werden die Druckmessungen und die daraus ermittelten Druckanstiegsraten beeinflusst. Anhand der folgenden Überlegungen soll der Temperatureinfluss auf die Druckmessung grob abgeschätzt werden. Der Abschätzung werden folgende vereinfachende Annahmen zugrunde gelegt:

- Aus der gemessenen Massenzunahme lässt sich der Wassergehalt im VIP berechnen ($X_{w,m} = m_w/m_{VIP,trocken}$, wobei der Anfangswassergehalt der VIPs nach Herstellung vernachlässigbar sei).
- Aus dem Wassergehalt und der Messtemperatur T_{mess} , ermittelt aus Temperatureaufzeichnungen, lässt sich der Wasserdampfdruck im VIP mit Gleichung (2-18), d.h. $p_D(T_{mess}) = \varphi(X_{w,m}) \cdot p_{D,sat}(T_{mess})$, berechnen.
- Der Dampfdruck lässt sich auf Raumtemperatur T_{Raum} umrechnen mit $p_D(T_{Raum}) = p_D(T_{mess}) \cdot p_{D,sat}(T_{Raum})/p_{D,sat}(T_{mess})$.

¹⁶Die Druckanstiege bei den großen Paneelen (40 x 40) cm² wurden in einer großen Vakuumkammer in einem teilbeheizten Technikum gemessen. Gerade das Ende des Messezeitraums lag in der Winterperiode. Dort traten teilweise Temperaturen von 15 °C und weniger auf, während im Sommer Temperaturen über 25 °C möglich waren. Bei den später bei 23 °C / 15 % r.F. durchgeführten Messungen ist zum einen der Temperatureinfluss geringer (kein Wasserdampf) und darüber hinaus wurde das Technikum vor den Messungen beheizt. Die Messungen an den kleinen Paneelen (10 x 10 cm² und 20 x 20 cm²) wurden immer im Labor bei einer Raumtemperatur von ~20 °C durchgeführt.

Der Temperatureinfluss lässt sich abschätzen, indem man den gemessenen Druck auf eine einheitliche Temperatur umrechnet. Dies wurde für die (40 x 40) cm² großen Paneele mit metallisierten Folien MF1 und MF2 durchgeführt. Abbildung A-4 zeigt für die (40 x 40) cm² großen VIPs die gemessenen und temperaturkorrigierten Werte (umgerechnet auf konstante Temperatur von 20 °C, wobei Abweichung von der Raumtemperatur bis etwa ± 7 °C auftraten).

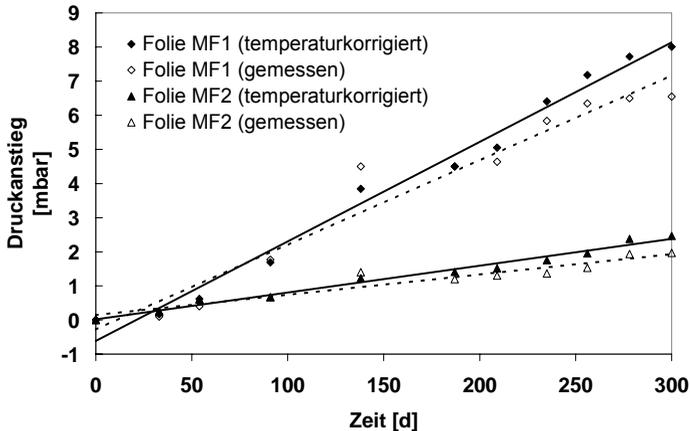


Abbildung A-4: Gemessene und temperaturkorrigierte Druckanstiege von 40 x 40 cm² großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2 bei 23 °C / 75 % r.F..

Deutlich ist ein Temperatureinfluss auf den Druckanstieg zu erkennen. Der auf 20 °C korrigierte Druckanstieg weist geringere Schwankungen auf als die Messdaten. Zugleich ist die korrigierte Druckanstiegsrate um ca. 20 % bei beiden Folientypen erhöht. Diese Betrachtungen zeigen, wie groß der Temperatureinfluss bei der Messung des Drucks sein kann, wenn Wasserdampf im VIP vorhanden ist.

Berechnet man mit den temperaturkorrigierten Druckanstiegsraten für die 40 x 40 cm² großen Paneele und aus den Druckanstiegsraten für die 10 x 10 cm² und 20 x 20 cm² großen VIPs (s. Tabelle 4-10) die flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeiten, dann lässt sich durch lineare Regression nach Gleichung (4-2) die Längen- und Flächendurchlässigkeit bei 23 °C / 75 % r.F. abschätzen. Die Ergebnisse der Regression sind wesentlich von der Qualität der Temperaturkorrektur beeinflusst und stellen deswegen lediglich grobe Schätzwerte dar. Dennoch sollen die Ergebnisse der linearen Regression hier vorgestellt werden, um mit einer einfachen Abschätzung zu zeigen, inwieweit sich Flächen- und Längendurchlässigkeit bei 23 °C / 75 % r.F. gegenüber den Durchlässigkeiten bei 23 °C / 15 % r.F. ändern.

Abbildung A-5 zeigt die Auftragung der flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeit über den Kehrwert der Kantenlänge für die verschieden großen VIPs mit den Folien MF1 und MF2. In Tabelle A-3 sind die aus der linearen Regression über

Fläche und Umfang ermittelten Längen- und Flächendurchlässigkeiten angegeben (die Regression wurde in Kapitel 4.3.1.1. beschrieben).

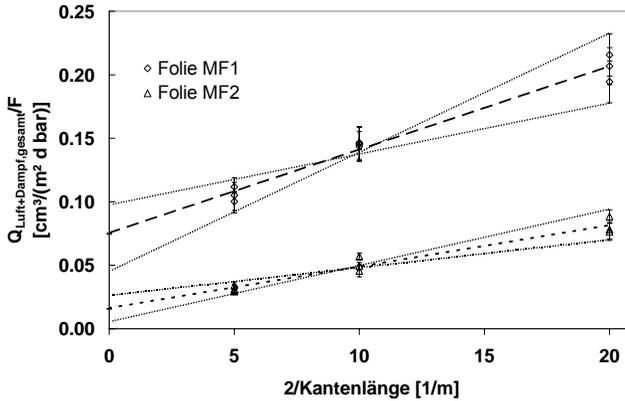


Abbildung A-5: Auftragung der aus den Druckanstiegen ermittelten flächenbezogenen Gesamtdurchlässigkeiten $Q_{\text{Luft+Dampf,gesamt}}/F$ über $2/\text{Kantenlänge}$ für unterschiedlich große VIPs, umhüllt mit der Folie MF1 und MF2 bei $23\text{ °C} / 75\% \text{ r.F.}$ (3 VIPs je Folie und Paneelgröße von $40 \times 40 \times 0,75 \text{ cm}^3$, $20 \times 20 \times 0,75 \text{ cm}^3$ und $10 \times 10 \times 0,75 \text{ cm}^3$).

Tabelle A-3: Durchlässigkeiten bei $23\text{ °C} / 75\% \text{ r.F.}$ für VIPs mit den Folien MF1 und MF2 ermittelt durch lineare Regression über Fläche und Umfang aus den an unterschiedlich großen VIPs ($40 \times 40 \text{ cm}^2$, $20 \times 20 \text{ cm}^2$ und $10 \times 10 \text{ cm}^2$) gemessenen und korrigierten Gesamtdruckanstiegen durch Luft und Wasserdampf.

Folie	$Q_{\text{Luft+Dampf,F}}$ [$\text{cm}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$]	$Q_{\text{Luft+Dampf,L}}$ [$\text{cm}^3/(\text{m} \cdot \text{d} \cdot \text{bar})$]
MF1	$0,068 \pm 0,010$	$0,0077 \pm 0,012$
MF2	$0,013 \pm 0,006$	$0,0038 \pm 0,007$

Am auffälligsten ist, im Unterschied zu den Durchlässigkeiten bei $23\text{ °C} / 15\% \text{ r.F.}$ (s. Tabelle 4-4 oder Tabelle 4-6), die hohe Flächendurchlässigkeit der metallisierten Folien MF1 und MF2 bei $23\text{ °C} / 75\% \text{ r.F.}$ (bei der Folie MF1 ist die Durchlässigkeit bei $23\text{ °C} / 15\% \text{ r.F.}$ um ein Mehrfaches niedriger, bei der Folie MF2 konnte sie gar nicht aufgelöst werden). Auch wenn die Abschätzung der Längen- und Flächendurchlässigkeit bei $23\text{ °C} / 75\% \text{ r.F.}$ aufgrund der Temperatureinflüsse erschwert war, so lassen die Auswertungen dennoch vermuten, dass die erhöhten Druckanstiege bei hohen Feuchten auf eine wesentlich größere Flächendurchlässigkeit zurückzuführen sind. Interessant ist auch ein Vergleich der Längendurchlässigkeiten. Vergleicht man die Längendurchlässigkeiten bei $75\% \text{ r.F.}$ (Tabelle A-3) und $15\% \text{ r.F.}$ (Tabelle 4-4), so scheint bei den metallisierten Folien die Längendurchlässigkeit bei $23\text{ °C} / 75\% \text{ r.F.}$ etwas höher zu sein. Aufgrund der hohen Schwankungsbreiten ist eine eindeutige Aussage nicht möglich.

Literatur

- [Atk1978] P.W. Atkins, *Physical Chemistry*, Oxford University Press, Oxford, 1978
- [Ben1999] P. Bendergast, B. Malone, *Characterization und Commercialization of INSTILL Vacuum Insulation Core*, Vuoto scienza et tecnologia, 1-2 1999, pp. 77-82
- [Bos1997] K. Bosch, *Elementare Einführung in die angewandte Statistik*, Friedrich Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft, Braunschweig, 1997
- [Bou1999] A. Bouguerra, *Temperature and moisture dependence on the thermal conductivity of wood-cement-based composite: experimental and theoretical analysis*, Appl. Phys. 32, pp2797-2803, 1999
- [Bry1989] J.A. Brydson, *Plastic Materials*, Butterworth-Heinemann, 5. Auflage, Oxford, 1989
- [Bru2003] S. Brunner, H. Simmler, *Development of Service Life Prediction Models for Vacuum Insulation Panels*, CISBAT Conference Proceedings, Lausanne, 2003
- [Cam1995] W.F. Cammerer, *Wärme- und Kälteschutz im Bauwesen und in der Industrie*, Springer-Verlag, 5. Auflage, 1995
- [Cap1985] R. Caps, *Strahlungswärmeströme in evakuierten thermischen Superisolationen*, Dissertation, Universität Würzburg, 1985
- [Cap1996] R. Caps, J. Hettfleisch, Th. Rettelbach, J. Fricke, *Thermal Conductivity of Spun Glass Fibers as Filler Material for Vacuum Insulations*, Thermal Conductivity 23, 1996, pp 373-382
- [Cap1997] R. Caps, U. Heinemann, J. Fricke, K. Keller, *Thermal conductivity of polyimide foams*, Heat and Mass Transfer, Vol. 40, pp. 269-280, 1997
- [Cap2001] R. Caps, U. Heinemann, M. Ehrmanntraut, J. Fricke, *Evacuated Insulation Panels Filled with Pyrogenic Silica Powders-Properties and Application*, High-Temperatures-High Pressures, volume 33, pp. 151-156, 2001

- [Cap2003a] R. Caps, *Vorrichtung und Verfahren zur Messung des Gasdruckes in evakuierten Dämmplatten*, Patent DE 10215213, 2003
- [Cap2003b] R. Caps, *Maßnahmen zur Qualitätssicherung von Vakuumisoliationspaneelen*, 1. Fachtagung VIP-Bau, Tagungsband, Rostock-Warnemünde, 2003
- [Car1995] Carlowitz, *Kunststofftabellen*, Carl Hanser Verlag, 4. Auflage, München, 1995
- [Fri1989] J. Fricke, D. Büttner, R. Caps, *Druckbelastbare evakuierte Superisolationen (DESIS)*, Schlussbericht zum Forschungsvorhaben DESIS, Universität Würzburg, 1989
- [Fri1984] J. Fricke, W.L. Borst, *Energie – Ein Lehrbuch der physikalischen Grundlagen*, 2. Auflage, Oldenburg Verlag, München, 1984
- [Har2004] C. Hartmann, *Einfluss von Feuchte auf den Wärmetransport in evakuierten Isolationen*, Diplomarbeit, Universität Würzburg, 2004
- [Hei1999] U. Heinemann, R. Caps, J. Fricke, *Characterization and Optimization of Filler Materials for Vacuum Super Insulations*, *Vuoto scienza et tecnologia*, 1-2 1999, pp. 43-46
- [Hei1993] U. Heinemann, *Wärmetransport in semitransparenten nicht-grauen Medien am Beispiel von SiO₂ Aerogelen*, Dissertation, Universität Würzburg, 1993
- [Het1988] J. Hetfleisch, *Wärmetransport in Glasfaser-Isolationen bei hohen Temperaturen*, Diplomarbeit, Universität Würzburg, 1988
- [Hir1966] J.O. Hirschfelder, C.F. Curtiss, *Molecular Theory of Gases and Liquids*, John Wiley & Sons, New York, 1966
- [Jac2003] S. Jacobsen, *persönliche Information*, Fa. Wipac Walsrode GmbH & Co. KG, Walsrode, 2003
- [Kag1969] M.G. Kaganer, *Thermal Insulation in Cryogenic Engineering*, IPST Press, Jerusalem, 1969

- [Kas1988] W. Kast, *Adsorption aus der Gasphase*, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1988
- [Kie1983] K. Kießl, *Kapillarer und dampfförmiger Feuchtetransport in mehrschichtigen Bauteilen*, Dissertation, Universität Essen (Gesamthochschule), 1983
- [Kit1973] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenburg Verlag, 1973
- [Kol1993] T. G. Kollie et al., *Instrument for Measurement of Vacuum in Sealed Thin Wall Packets*, US-Patent 5249454, 1993
- [Kre1993] F. Kreith, M.S. Bohn, *Principles of Heat Transfer*, West Publishing Company, St. Paul / USA, 1993
- [Kri1978] O. Krischer, W. Kast, *Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik*, Springer-Verlag, 1978
- [Kün1994] H.M. Künzel, *Verfahren zur ein- und zweidimensionalen Berechnung des gekoppelten Wärme- und Feuchtetransports in Bauteilen mit einfachen Kennwerten*, Dissertation, Universität Stuttgart, 1994
- [Lan1998] H.-C. Langowski, *Barriereigenschaften von Folien, Schichten und Verbunden*, IVV (Hrsg.), Verpackungen aus Kunststofffolien. Neue Entwicklungen und Anwendungsfelder. Symposium FachPack '98. 15. Oktober 1998, Messe-Center Nürnberg. Freising: IVV, 1998
- [Lu1991] X. Lu, *Transport Properties of Porous Media*, Dissertation, Universität Würzburg, 1991
- [Lut1994] P. Lutz et al, *Lehrbuch der Bauphysik*, Teubner Verlag, Stuttgart, 3. Auflage, 1994
- [Man1997] D. Marsal, *Finite Differenzen und Elemente – Numerische Lösung von Variationsproblemen und partiellen Differentialgleichungen*, Springer Verlag, 1989
- [Mar1989] P. Manini, *The COMBOGETTERTM as a Key Component in the VIP Technology*, *Vuoto scienza et tecnologia*, Vol. 16, N. 2, pp. 45- 53, 1997
- [Nen1994] J. Nentwig, *Kunststoff Folien*, Carl Hanser Verlag , München, 1994

- [Nil1989] O. Nilson, G. Rüschenpöhler, J. Groß J. Fricke, *Correlation between Thermal Conductivity and elasto-mechanical Properties of Compressed Porous Media*, High Temp.- High Press 21, 267, 1989
- [Phi1957] J.R. Philip, D.A. de Vries, *Moisture Movement in Porous Material under Temperature Gradient*, Trans. Am. Geophys. Union 23, No 2, pp. 222- 232, 1957
- [Pre1992] W. H. Press et al, *Numerical Recipes in C –The Art of Scientific Computing*, Cambridge University Press, 2. Auflage, 1992
- [Rai2003] A. Raicu et al., *Entwicklung innovativer Wärmedämmverbundsysteme mit Vakuumisulationspaneelen für Anwendung im Bau*, 1. Fachtagung VIP-Bau, Tagungsband, Rostock-Warnemünde, 2003
- [Rau2002] A. Rauch, *Messmethoden zur Qualitätssicherung von Vakuumisulationspaneelen*, Diplomarbeit, Universität Würzburg, 2002
- [Rei2003] T. Reis, Einfluss von Feuchte auf die Wärmeleitfähigkeit von Vakuumisulationspaneelen, Diplomarbeit, Universität Würzburg, 2003
- [Ret1996] T. Rettelbach, *Der Wärmetransport in evakuierten Pulvern bei Temperaturen zwischen 10 K und 275 K*, Universität Würzburg, 1996
- [Sax1989] S.C. Saxena, *Thermal Accomodation and Adsorption Coefficients of Gases*, Hemisphere Publishing, Volume II-1, New York, 1989
- [Sch2001] H. Schwab, U. Heinemann, J. Fricke, *Vakuumisulationspaneel- ein hocheffizientes Dämmsystem für die Zukunft*, Detail – Zeitschrift für Architektur, pp. 1301-1304, 7, 2001
- [Sch2003] H. Schwab et al., *Entwicklung und Anwendung von evakuierten höchsteffizienten Dämmungen für Gebäude*, Schlussbericht vom ZAE Bayern Report 2-1203-21 (2003), Würzburg, 2003

- [Smo1898] M. Smoluchowski, *Über den Temperatursprung bei der Wärmeleitung von Gasen*, Sitzungsbericht der Akademie der Wissenschaft (Wiener Berichte 107), Wien, 1898
- [Sta1985] D. Stauffer, *Introduction to Percolation Theory*, Taylor and Francis, London, 1985
- [Tip1994] P.A. Tipler, *Physik*, Spektrum akademischer Verlag, Heidelberg, 1994
- [Umw1997] Umweltbundesamt, *Daten zur Umwelt*, Bericht: der Zustand der Umwelt in Deutschland, Berlin 1997
- [Utz1995] H. Utz, *Barriereigenschaften aluminiumbedampfter Kunststofffolien*, Dissertation TU München, 1995
- [VDI1997] VDI-Gesellschaft, *Wärmeatlas*, 8. Auflage, Springer Verlag, 1997
- [Vie1993] W.R. Vieth, *Diffusions in and through Polymers*, Carl Hanser Verlag, 1993
- [Vos1994] R. De Vos, D. Rosbothom, in ICI Polyurethanes 94, Ed. R. De Vos (Brussels: Communications Systems SA), 1994
- [Vri1987] D.A. de Vries, *The Theory of Heat and Moisture Transfer in Porous Media revisited*, Heat and Mass Transfer 30, No. 7, 1987
- [Wac2001] Wacker Chemie GmbH, *Wacker HDK[®] fumed silica for toners and developers*, Informationsbrochüre der Wacker Chemie GmbH, München 2001
- [Wac2002] Wacker Chemie GmbH, *Wacker HDK[®] T30*, Datenblatt der Wacker Chemie GmbH, München, 2002
- [Wac2004] Wacker Chemie GmbH, *Herstellung – chemischer Aufbau von Wacker HDK[®]*, Homepage: www.wacker.com/internet/webcache/de_DE/PTM/TM/HDK/HERSTELLUNG.pdf, 2004

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die in verschiedener Form zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben:

- Herrn Prof. Dr. Jochen Fricke für die interessante Themenstellung und die großzügig gewährte Freiheit und Unterstützung bei der Arbeit, wodurch ein wissenschaftliches Arbeiten in guter Atmosphäre ermöglicht wurde.
- Den Mitarbeitern in der Arbeitsgruppe Johannes Wachtel, Hans Scheuerpflug, Cornelia Stark, Irina Lapidus, Inna Slivina, Marco Noll, Daniel Kraus und dem Gruppenleiter Dr. Ullrich Heinemann für die gesamte Unterstützung während der Promotion und während der Arbeit am VIP-Gebäude-Projekt.
- Den Mitarbeitern Thomas Reis und Andreas Rauch, welche im Rahmen ihrer Diplomarbeiten wertvolle Beiträge zu dieser Arbeit leisteten.
- Herrn Dr. Roland Caps für die Diskussionsbereitschaft, die zahlreichen Anregungen und das Korrekturlesen der Arbeit.
- Dem „Bayerischen Zentrum für Angewandte Energieforschung e.V.“ (ZAE Bayern) mit allen seinen Mitarbeitern für die guten Rahmenbedingungen und das kollegiale Miteinander.
- Der Fa. Wacker Chemie GmbH für die Bereitstellung und Fertigung von Rohplatten oder VIPs aus pyrogener Kieselsäure.
- Dem Bayerischen Staatsministerium für Wirtschaft, Infrastruktur, Verkehr und Technologie für die Förderung des Forschungsvorhabens „Vakuumdämmung für Gebäude“ in dessen Rahmen die hier vorgestellten Arbeiten durchgeführt wurden.

Besonders bedanken möchte ich mich bei meiner Frau Ursula für die große Unterstützung und Geduld während der Arbeit und bei meinen Eltern, die mir immer beistanden und beistehen.

Ehrenwörtliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die Dissertation eigenständig, d.h. insbesondere selbständig ohne Hilfe eines kommerziellen Promotionsberaters, angefertigt habe und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel genutzt habe.

Die Dissertation wurde bisher nicht in gleicher oder anderer Form in einem anderen Prüfungsfach oder an einer anderen Hochschule vorgelegt, mit dem Ziel einen akademische Grad zu erwerben.

Im Oktober 1994 wurde mir von der Universität Würzburg der akademische Grad „Diplom-Physiker (Univ.)“ verliehen. Weitere akademische Grade habe ich weder erworben noch zu erwerben versucht.

Würzburg, den 28.12.2004

Hubert Schwab

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Hubert Schwab
Hauptstraße 5
97497 Dingolshausen
geb. am 11.12.1967 in Gerolzhofen
verheiratet

Schulbildung:

1974-1978

1978-1987

Grundschule Michelau
Riemenschneider-Gymnasium in Würzburg
allgemeine Hochschulreife: Mai 1987

Wehrdienst:

7/1987-10/1988

Panzergrenadiereinheit in Ebern

Hochschulbildung:

11/1988-10/1994

Studium der Physik an der
Julius-Maximilians-Universität Würzburg
Diplomarbeit: Dynamische Optimierung von
regionalen Energieversorgungssystemen unter
Einbeziehung von supraleitenden Energie-
speichern

Fortbildung:

3/1995-9/1995

Ausbildung zum Netzwerkspezialisten bei der
ptm-Akademie

Berufliche Tätigkeiten:

9/1995- 5/2000

Forschungsingenieur und Netzwerkbetreuer
bei der YTONG Holding GmbH in
Schrobenhausen

ab 6/2000

wissenschaftlicher Mitarbeiter am Bayerischen
Zentrum für Angewandte Energieforschung
e.V. in Würzburg

Würzburg, den 28.12.2004

Hubert Schwab

