

**EIGENSCHAFTEN UND EINSATZMOEGlichkeiten VON
AEROGELFENSTERN IM VERGLEICH MIT KONVENTIONELLEN
SOWIE EVAKUIERTEN FENSTERN**

INAUGURALDISSERTATION

zur

Erlangung der Würde eines Doktors der Philosophie
vorgelegt der
Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Basel

eingereicht von

GEORGES REBER

aus Basel BS

Basel, 1991

Genehmigt von der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
auf Antrag der

Herren Prof. Dr. H. J. Güntherodt
Prof. Dr. G. R. Plattner

Basel, den 26. Februar 1991

Prof. Dr. M. Frey
Dekan

Vorwort

Das Fenster als transparentes Bauteil lässt sich zur *passiven Nutzung der Sonnenenergie* einsetzen und kann so die Energiebilanz eines Gebäudes positiv beeinflussen. Wärmeschutztechnische Massnahmen an der opaken Gebäudehülle kommen erst voll zur Geltung, wenn auch Fenster eingesetzt werden, die bezüglich ihrer wärmedämmenden Eigenschaften sowie ihrer Transparenz optimiert worden sind. Durch eine sorgfältige, auf die klimatischen Verhältnisse abgestimmte Bauweise, lässt sich so der Heizenergiebedarf gegenüber herkömmlichen Gebäuden drastisch absenken; dies ohne Beeinträchtigung des Wohlbefindens von dessen Bewohnern.

Das Hauptziel einer energiebewussten Bauweise ist die *Absenkung des Primärenergieverbrauches*, der ja vorwiegend durch fossile Energieträger gedeckt wird. Wenn man bedenkt, dass in den Industrieländern je nach Klima zwischen 30 - 40% der Endenergie für Heizwärme aufgewendet werden, so ergibt sich hier ein enormes Energiesparpotential.

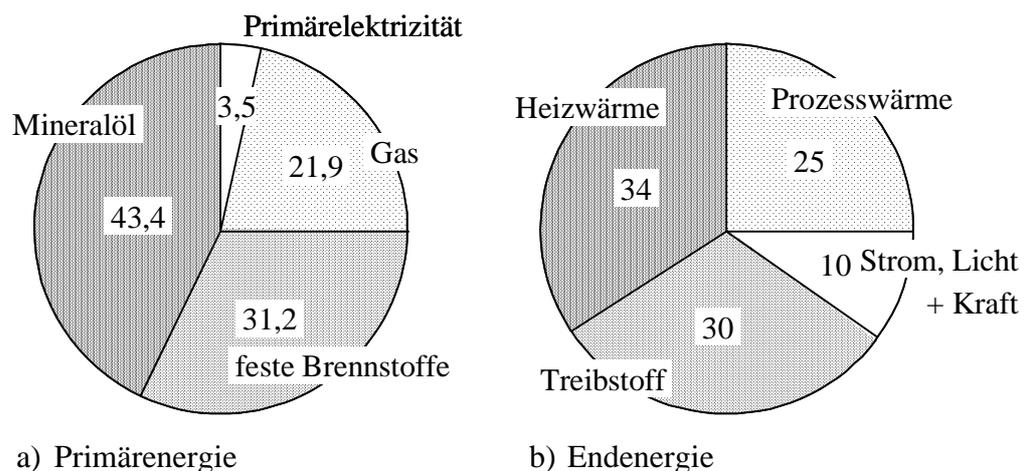


Abb. 1 a) Aufteilung des Weltenergieverbrauches nach Primärenergiequellen 1980 [Cre 84]. b) Aufteilung des Endenergiekuchens in Nutzungsarten für die BRD 1987 als typisches Beispiel für alle Industrienationen [Die 89].

Der Einsparung von Primärenergie kommt heute eine besondere Bedeutung zu, nachdem die Wissenschaft die Gefahr einer globalen Erwärmung infolge des *Treibhauseffektes* erkannt hat [Gas 89]. Die Verbrennung fossiler Energieträger sorgt für die Anreicherung des Treibhausgases CO_2 . Die CO_2 -Konzentration ist so vom vorindustriellen Wert von 280 ppm auf den heutigen Wert von 350 ppm angestiegen und ist eindeutig anthropogenen Ursprungs.

Die Wirkungsweise der Treibhausgase in der Atmosphäre soll hier anhand eines einfachen Modelles illustriert werden. Die Atmosphäre sei hier durch eine Glasscheibe reprä-

sentiert, deren Absorbtionseigenschaften wir so wählen, dass die auftretenden Energieflüsse den Energiehaushalt der Erde widerspiegeln. Ein solches Modell hat vielleicht vor allem illustrativen Charakter, entspricht aber der Vorgehensweise des Physikers, zunächst mit einem einfachen Modell Tendenzen festzustellen und Größenordnungen abzuschätzen, bevor detailliertere Rechnungen gemacht werden. Wir können hier übrigens exakt dieselben Methoden anwenden, wie bei der Berechnung der Energiebilanz eines Fensters.

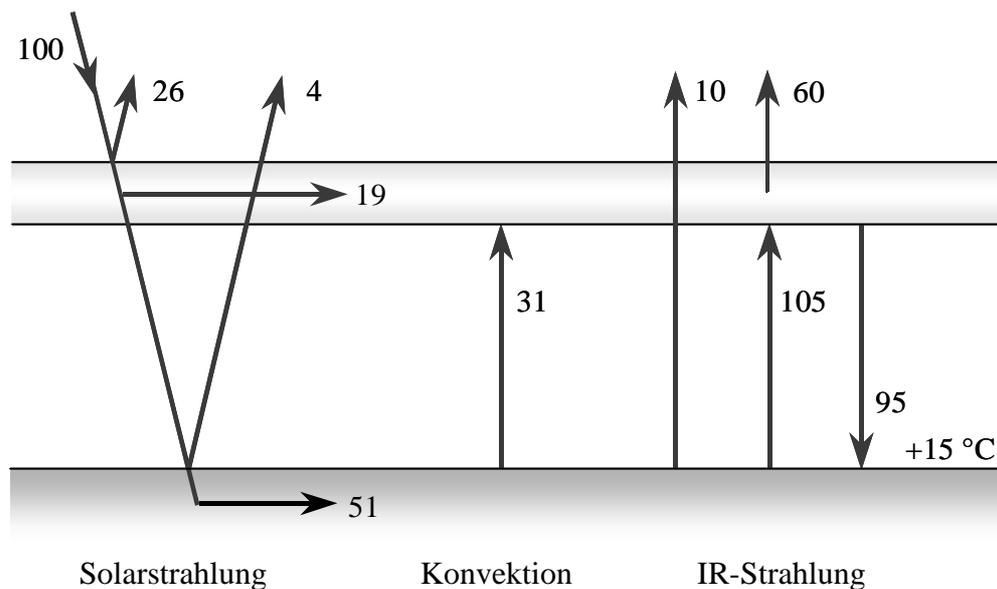


Abb. 2 Einfaches Modell für die Energiebilanz der Erde. Eingezeichnet sind die Nettoenergieflüsse.

Ohne die natürlichen Treibhausgase in der Atmosphäre läge die Gleichgewichtstemperatur bei -18 °C . Durch die "Glasscheibe" wird die Abstrahlung im IR-Bereich behindert. Um die absorbierte Solarstrahlung wieder loszuwerden, muss sich die Erdoberfläche erwärmen bis auf die neue Gleichgewichtstemperatur von $+15\text{ °C}$.

Durch Anreicherung des Verbrennungsproduktes CO_2 und anderer Treibhausgase wie Methan wird diese Gleichgewichtstemperatur nach oben verschoben. Man erhält auch mit solchen einfachen Modellen bei Verdoppelung des CO_2 -Gehaltes Temperaturerhöhungen in der Größenordnung von 1 °K , dies aber ohne Berücksichtigung von Rückkoppelungseffekten. In komplexeren Klimamodellen verstärken die positiven Rückkoppelungseffekte die primäre Erwärmung um einen Faktor 2 - 4. Gestützt werden solche Vorausagen durch Messungen des CO_2 -Gehaltes in Eisbohrkernen und Bestimmung der Temperatur nach der Deuterium-Methode. Danach wird über Jahrtausende eine Korrelation von Temperatur und

CO₂-Gehalt festgestellt. Unter Berücksichtigung des heutigen Trends ist eine Verdoppelung des CO₂-Äquivalents der Treibhausgase im Jahre 2030 zu erwarten. Diese wirkt sich wegen der Trägheit des Systems etwa im Jahr 2050 voll aus.

Die anthropogene Veränderung der Temperatur von 1860 bis heute beträgt zwischen 0,5 - 0,8 °K. Ob eine solche Temperaturerhöhung auf eine natürliche Schwankung zurückzuführen ist, ist im jetzigen Zeitpunkt noch eine offene Frage, doch entspricht dies auch den Vorausagen komplexer Modelle. Es kann jedoch gesagt werden, dass wir uns ein solches globales Experiment mit dessen möglichen fatalen Folgen schlicht nicht leisten können. Es geht vor allem auch darum, die Verantwortung gegenüber kommenden Generationen wahrzunehmen.

Bisher galt die Höhe des Energieverbrauchs geradezu als Masstab für das industrielle Niveau und die Prosperität einer Volkswirtschaft. Nach den beiden Erdölkrisen trat eine gewisse *Entkoppelung von Energieverbrauch und Wirtschaftswachstum* ein [Grö 89]. Die *Entwicklung emissionsarmer Systeme* und die *Optimierung der Energienutzung*, die zur Abwendung des Treibhauseffektes notwendig sind, werden aber viel weitreichender sein und werden die Energiewirtschaft von Grund auf verändern. Der veränderte Umgang mit unseren Energieresourcen wird wahrscheinlich aber auch zu einem Umdenken in Richtung eines neuen Wertesystems führen, in dem die Produktion nicht den Erfordernissen der Wirtschaft, sondern den wahren Bedürfnissen des Menschen zu dienen hat. Dazu gehört, angesichts der Einsicht, dass durch die unkontrollierten menschlichen Eingriffe in die Naturvorgänge die eigenen Lebensgrundlagen zerstört werden, eine Lebenshaltung, in der sich der Mensch wieder in die Kreisläufe der Natur einfügt.

Inhalt

1	EINLEITUNG	1
1.1	Bedeutung, Stellung und Eigenschaften des Fensters	1
1.2	Evakuierte Fenster	2
1.3	Aerogelfenster	3
2	AEROGEL - EIN TRANSPARENTER WÄRMEISOLATOR	6
2.1	Herstellung von Aerogel	6
2.1.1	Überblick	6
2.1.1.1	Hauptschritte der Aerogelherstellung	6
2.1.1.2	Methoden zur Herstellung von Aerogel	7
2.1.2	Detaillierte Beschreibung der Herstellung von Aerogel in Blockform	8
2.1.2.1	Herstellung des Alkogels	8
2.1.2.2	Überkritische Trocknung	9
2.1.2.3	Wärmebehandlung	9
2.2	Struktur	10
2.2.1	Übersicht	10
2.2.2	Standard-Verfahren zur Ermittlung der Porosität	11
2.2.2.1	Quecksilberporosimetrie	11
2.2.2.2	Porenverteilung aus Stickstoff-Adsorption	12
2.2.3	Direkte Beobachtungstechniken	13
2.2.3.1	Rasterelektronenmikroskopie	13
2.2.3.2	Transmissionselektronenmikroskopie	14
2.2.4	Kleinwinkelstreuung und fraktale Geometrie als Modell zur Auswertung	15
2.2.5	Zusammenfassende Darstellung der experimentellen Befunde	18
2.3	Eigenschaften von Aerogel	20
2.3.1	Übersicht	20
2.3.2	Aerogel als perkolierendes System	21
2.3.2.1	Zur Perkolationsstheorie	21
2.3.2.2	Anwendung der Perkolationsstheorie auf Aerogel	22
2.3.3	Akustische Eigenschaften	23
2.3.3.1	Schallausbreitung und elastische Konstanten	23
2.3.3.2	Dynamisches Verhalten der Aerogelstruktur	25
2.3.4	Wärmetransport	26

2.3.5	Optische Eigenschaften	28
2.3.5.1	Zur Transparenz und Streuung	28
2.3.5.2	Brechindex	28
2.3.5.3	Lichtstreuung und Strukturdaten aus Lichtstreuexperimenten	29
2.4	Anwendungen von Aerogel	31
2.4.1	Cerenkov-Detektoren	31
2.4.2	Aerogel als akustisches Material	32
2.4.2.1	Nützliche Anwendungen	32
2.4.2.2	Schalldämmung bei Aerogelfenstern	33
2.4.3	Aerogel in Fenstersystemen	33
2.4.3.1	Aerogelfenster aus der Sicht der Fensterentwicklung	33
2.4.3.2	Randbedingungen für den Einsatz von Aerogel in grossem Masstab	34
2.4.4	Transparente Wärmedämmung	36
3	KONVENTIONELLE FENSTER UND IHRE WEITERENTWICKLUNG	40
3.1	Kenngrossen zu energetischen Bewertung von Fenstern	40
3.1.1	Der Wärmedurchgangskoeffizient k	41
3.1.2	Der Gesamtenergiedurchlassgrad g	41
3.2	Wärmetechnisches Verhalten von Fenstern	42
3.3	Berechnung der Kenngrössen bei Fenstern aus IR-opaken Glasscheiben	44
3.3.1	Berechnung des k -Wertes	45
3.3.1.1	Der Strahlungsbeitrag	46
3.3.1.2	Der Leitungsbeitrag oder der Wärmetransport in Gasen	47
3.3.1.3	Der Konvektionsbeitrag	49
3.3.2	Berechnung des g -Wertes	51
3.3.2.1	Sekundäre Wärmeabgabe	51
3.3.2.2	Berechnung der optischen Daten eines Fenstersystems aus den Eigenschaften der Einzelkomponenten	52
3.3.2.3	Grundlagen zur Berechnung der optischen Daten einer Einzelkomponente	54
3.4	Berechnung der Energiebilanz und der Kenngrössen für beliebige Fenstersysteme unter anwendungsnahen Bedingungen	57
3.4.1	Wärmeübergang innen	62
3.4.2	Wärmeübergang aussen	62
3.5	Strategien zur Stopfung des Wärmelecks bei Fenstern	63

4	EVAKUIERTE FENSTERSYSTEME	70
4.1	Der Wärmetransport in evakuierten Fenstersystemen	70
4.2	Messungen an evakuierbaren Fenstersystemen	71
4.3	Schlussfolgerungen	73
5	AEROGELFENSTER	75
5.1	Wärmetechnisches Verhalten	75
5.1.1	Allgemeine Betrachtungen zum Strahlungstransport	75
5.1.2	Konzept des effektiven Emissionsvermögens	77
5.1.3	Experimentelle Bestimmung der Beiträge zum Wärmetransport	78
5.1.3.1	Der Strahlungsbeitrag	78
5.1.3.2	Der Leitungsbeitrag	79
5.1.4	Einfluss der Temperatur und der Randemissivitäten	80
5.1.5	Einfluss der Probendicke	82
5.1.6	Messung an Fensterelementen	83
5.1.6.1	Messverfahren	83
5.1.6.2	Aerogel in Kachelform	84
5.1.6.3	Aerogel in Granulatform	86
5.2	Optisches Verhalten	88
5.2.1	Allgemeines zur Strahlungstransmission	88
5.2.2	Messverfahren	88
5.2.3	Messungen	89
5.2.3.1	Spektral aufgelöste Transmission	89
5.2.3.2	Winkelaufgelöste Transmission an Fensterelementen	90
5.3	Schlussfolgerungen	93
6	THERMOGRAVIMETRISCHE MESSUNGEN AN AEROGEL	96
6.1	Ziel der Messungen	96
6.2	Aerogeloberfläche nach der Herstellung	97
6.3	Thermische Behandlung zur Entfernung der organischen Rückstände	98
6.4	Simultane thermogravimetrische - massenspektrometrische Messungen im Temperaturbereich 20-900 °C	99
6.5	Physisorbierte Stoffe bei Temperaturen unterhalb 250 °C	102
6.5.1	Thermogravimetrische Befunde	102
6.5.2	Ausgasen von Aerogel bei der Anwendung in Fenstersystemen	103

<i>Inhalt</i>	VII
Zusammenfassung	108
Danksagung	112
Literatur	113
Diese Arbeit und ihr Autor	121

Gewidmet allen Dozenten, Kollegen und Kolleginnen vom physikalischen, astronomischen und mathematischen Institut der Uni Basel und dem anorganisch-chemischen Institut der Uni Zürich.

1 EINLEITUNG

1.1 Bedeutung, Stellung und Eigenschaften des Fensters

Das Fenster ist ein komplexes Bauteil der Gebäudehülle; im Gegensatz zu Wand, Dach und Boden hat ein Fenster nicht in erster Linie als Abgrenzung des Raumes gegen das Aussenklima zu dienen, sondern als Öffnung, die in verschiedener Hinsicht den Bezug zur Umwelt herstellen soll. Als Tageslichtquelle soll es die Räume erhellen, den visuellen Kontakt zur Umwelt gewährleisten und manchmal auch zur Lüftung dienen.

Auf Grund dieser Hauptanforderungen des Fensters, nämlich als Öffnung zu dienen, gilt das Fenster in energetischer Hinsicht oft noch als Schwachstelle der Gebäudehülle. Die Optimierungsregel für opake Bauteile - je kleiner der k-Wert (Wärmeleitfähigkeit samt Wärmeübergänge) desto kleiner der Verlust - ist wegen der Transparenz des Fensters nur in der Dunkelheit richtig. Bei der Energiebilanz des Fensters muss der Strahlungsgewinn am Tage mitberücksichtigt werden. Dies geschieht mit einem weiteren Parameter, dem Gesamtenergiedurchlassgrad g , der den Anteil der Strahlungsenergie angibt, der in den Raum gelangt. Dieser enthält sowohl den Anteil direkter solarer Transmission, als auch den indirekten Anteil, der infolge Absorption in den transparenten Fensterbestandteilen und anschliessender Temperaturerhöhung als sekundäre Wärmeabgabe in den Raum gelangt.

Bei bekannter Einstrahlung I und Temperaturdifferenz ΔT zwischen Aussen- und Innenraum kann so die Energiebilanz als Differenz zwischen Strahlungsgewinn und Verlust durch Wärmetransport geschrieben werden: $Q = k \cdot \Delta T - g \cdot I$.

Es ist eigentlich erstaunlich, dass das energetische Verhalten eines so komplexen Bauteiles wie das Fenster bei gegebenen Betriebsbedingungen (Klima, Orientierung, Benutzerverhalten) bloss durch zwei Parameter g und k beschrieben werden kann. Die Antwortzeit auf dauernd wechselnde klimatische Bedingungen (solarer Gewinn, Wärmegewinn bzw. -verluste) ist ja klein verglichen mit den anderen Teilen der Gebäudehülle. Im Sinne einer möglichst positiven Energiebilanz besitzt das ideale Fenster demnach einen geringen Verlust durch Wärmetransport (d.h. kleiner k-Wert) bei gleichzeitig hoher Transparenz (d.h. grosser g-Wert).

Betrachtet man die drei Wärmetransportarten, die in einem Fenster auftreten - Leitung, Konvektion und Strahlung - so stellt man fest, dass die Strategien, die sich daraus zur Stopfung des Wärmelecks ergeben, dem Wunsch nach hoher Transparenz oft entgegenlaufen: Eine Vergrösserung der Scheibenzahl verringert zwar alle drei Wärmetransportarten, geht aber auf Kosten der Transparenz. Selektive Schichten, die den Strahlungsanteil vermindern, haben ebenfalls eine gewisse Beeinträchtigung der Transparenz zur Folge.

Gerade hinsichtlich der Optimierung des Verhältnisses g/k ist die Entwicklung des Fensters deshalb noch keineswegs abgeschlossen. Es sollte möglich sein, ein Fenster zu entwickeln, das über ein Jahr gemittelt für jede Orientierung eine bessere Energiebilanz aufweist, als eine gut isolierende opake Gebäudehülle, selbst in einem nördlichen Klima. Gegenstand dieser Arbeit ist es, neuere Lösungen dieses Problems zu erarbeiten und darzustellen.

1.2 Evakuierte Fenster

Zunächst werden die Eigenschaften von Fenstern mit evakuiertem Scheibenzwischenraum erarbeitet. Das Problem der Handhabung grosser Vakua in (zerbrechlichen!) Verglasungen führt uns auf natürliche Weise von dicken Fenstern zu evakuierten Verglasungen mit sehr kleinem Scheibenabstand ($<1\text{mm}$).

Bei Verringerung des Gasdruckes im Scheibenzwischenraum gelangt dort die mittlere freie Weglänge der eingeschlossenen Gasmoleküle relativ rasch in den Bereich des Scheibenabstandes. Man erwartet hier deshalb bei gegebenem Druck eine geringere effektive Wärmeleitfähigkeit λ des Gasmediums, als bei grösseren Scheibenabständen. Für den Wärmetransport durch das Fensterelement ist jedoch die Wärmeleitzahl $\Lambda = \lambda/d$, also der Quotient von Wärmeleitfähigkeit λ und Scheibenabstand d massgebend. Es zeigt sich, dass diese Wärmeleitzahl bei gegebenem Druck mit abnehmendem Scheibenabstand ansteigt.

Um denselben k -Wert zu erreichen müssten also die Fenster mit geringerem Glasabstand auf einen tieferen Gasdruck gebracht werden. Dies ist sicher ein Nachteil, da es in der Praxis darum gehen wird, einen solchen Enddruck über möglichst lange Zeit aufrechtzuerhalten. Die Probleme der Eindiffusion von leichten Gasen wie Helium, als auch dasjenige eines dichten Randverbundes sind also für kleine Scheibenabstände als kritischer zu betrachten.

Für die erforderlichen Enddrucke unterhalb 10^{-3} mbar reichen organische Dichtmittel nicht mehr aus. Es muss an einen gelöteten Metall-Glas-Randverbund gedacht werden oder an eine Verschmelzung der beiden Glasscheiben am Rand. Das Problem der Wärmespannungen, die bei letzterer Lösung auftreten, ist bei geringen Scheibenabständen schwieriger zu bewältigen.

Für einen kleinen Scheibenabstand sprechen also "nur" die wesentlich kleineren evakuierten Volumina, sowie der Vorzug, dass unauffällige, ja praktisch unsichtbare Abstandshalter verwendet werden können.

Ein Evakuieren von Doppelverglasungen sollte eigentlich nur als zusätzliche Massnahme für Fenster gesehen werden, deren Strahlungsanteil an den Wärmetransport schon

durch IR-reflektierende Schichten reduziert worden ist: Es hat keinen Sinn, ein Loch zu stopfen und daneben ein noch grösseres offen zu lassen.

Die Beschreibung des *Wärmetransportes* in evakuierten und nicht-evakuierten Mehrfachverglasungen ist relativ einfach, zum einen weil die Glasscheiben im IR-Bereich als opak betrachtet werden können, zum andern, da die Wärmetransportarten ungekoppelt erscheinen (abgesehen von gewissen Gasfüllungen mit Absorptionsbanden im IR). Einfache thermische Netzwerke reichen aus, den Wärmetransport zu ermitteln.

Es tritt einzig die Schwierigkeit auf, dass die Widerstände des Netzwerkes temperaturabhängig sind, doch kann ein einfaches Verfahren angegeben werden, bei dem die Scheibenoberflächentemperaturen iterativ bestimmt werden. Das Verfahren konvergiert sehr rasch gegen den Gleichgewichtszustand mit den zugehörigen Widerständen des Netzwerkes.

Ebenfalls relativ einfach ist die Ermittlung von *Transmissions-, Reflektions- und Absorptionseigenschaften* im Bereich solarer bzw. sichtbarer Strahlung. Es können gleich mehrere Verfahren zur Lösung angegeben werden.

Die Ermittlung der *Energiebilanz* einer Mehrfachverglasung unter Betriebsbedingungen am Tag (d.h. mit solarer Einstrahlung) kann im Prinzip auf ähnliche Weise erfolgen, indem die Erhöhung der Scheibentemperaturen infolge Absorption der Einstrahlung zusätzlich mit einbezogen wird. Doch steht ein sehr elegantes Verfahren nach Rubin [Rub 82a] zur Verfügung, das die auftretenden Flüsse auf direktere Art liefert. Darin werden die vorkommenden Flüsse in Abhängigkeit von der Temperatur ausgedrückt. Die Temperaturverteilung wird anschliessend ebenfalls iterativ bestimmt, indem aber jetzt die auftretenden Flüsse nach der Temperatur entwickelt werden. Iterationsbedingung für die neue Temperaturverteilung ist dabei eine Energiebilanz, die für jede Schicht des Systems aufgestellt wird.

1.3 Aerogelfenster

Es gibt nun eine weitere Möglichkeit zur Herstellung eines superisolierenden Fensters, das die eingangs erwähnten Schwierigkeiten evakuierter Fensterelemente in mancher Hinsicht umgeht: Der Scheibenzwischenraum kann gefüllt werden mit *Aerogel*, einem mikroporösen hochtransparenten Glasschaum.

Dieses Material besitzt einen Porenanteil von über 90%. Die Grösse dieser Poren ist kleiner als die mittlere freie Weglänge des Füllgases bei Umgebungsdruck, so dass die Leitung durch das Gas schon bei Umgebungsdruck reduziert erscheint. Zur Beseitigung dieser restlichen Gasleitung reicht eine Reduktion des Gasdruckes auf ca. 50 mbar aus. Zur Aufrechterhaltung solcher Drucke über längere Zeit sind hochwertige organische Randverbunde,

wie sie heute schon verfügbar sind, ausreichend. Das feine Aerogelgerüst reicht aus, den Umgebungsdruck, der auf den Scheiben lastet, zu tragen; Distanzhalter erübrigen sich somit.

Die Schwierigkeit, den erforderlichen Gasdruck aufrecht zu erhalten hat hier nicht nur mit dem Randverbund, sondern auch mit dem Aerogel selbst zu tun: Wegen seiner riesigen spezifischen Oberfläche adsorbiert Aerogel erhebliche Mengen von Gasen. Ein Grossteil davon ist wegen seiner Polarität Wasser. Aerogelblöcke, die der Atmosphäre ausgesetzt werden, setzen sich innert kurzer Zeit in einen Gleichgewichtszustand mit dem Wasserdampfpartialdruck der Umgebung. Dieses Wasser kann durch Trocknung bei höheren Temperaturen ausgetrieben werden. Dazu werden thermogravimetrische Messungen gemacht und im Anschluss daran ein theoretisches Modell für den Trocknungs- bzw. Diffusionsprozess im Aerogel erarbeitet.

Es muss also wohl überlegt werden, welchen Aufwand man betreiben muss, um die zu erwartende Reduktion des k -Wertes um ca. 25% zu erreichen, die bei der Absenkung des Gasdruckes eintritt. Es ist nämlich auch denkbar, den Aerogelblock mit einem oder zwei Luftspalten anzuordnen, um so auf eine etwas anspruchslosere Art eine weitere Reduktion des k -Wertes zu erhalten.

Der *Wärmetransport* in Aerogel erfolgt über Leitung und Strahlung; die Konvektion bleibt wegen der Kleinheit der Poren unmessbar gering und vernachlässigbar. Die Beschreibung des Wärmetransportes im Aerogel ist mit der zusätzlichen Schwierigkeit verbunden, dass Strahlung und Leitung gekoppelt sind. Dies im Gegensatz zu gewöhnlichen Mehrfachverglasungen, wo die Entkopplung der Wärmetransportarten für ein relativ einfaches Gleichungssystem zur Beschreibung des Wärmetransportes verantwortlich ist.

Die Beschreibung des Wärmetransportes in Aerogel muss die Kopplung zwischen Leitung und Strahlung berücksichtigen. Im Aerogel wird nämlich in jeder Teilschicht ein gewisser Anteil der *Strahlung* absorbiert und entsprechend der lokalen Temperatur re-emittiert. Dabei kommuniziert jede Schicht je nach freier Weglänge der Photonen mehr oder weniger stark sowohl mit den Rändern als auch mit den anderen Schichten des Systems. Gleichzeitig wird entsprechend dem lokalen Temperaturgradienten ein Teil der Wärme durch *Leitung* von Schicht zu Schicht transportiert. Leitungs- und Strahlungsanteil hängen somit an jeder Stelle voneinander ab, sie erscheinen "gekoppelt".

Im Gleichgewicht resultiert eine nichtlineare Temperaturverteilung und eine gewisse Anhebung des totalen Wärmetransportes gegenüber einem ungekoppelten System. Dieser Gleichgewichtszustand wird durch eine komplizierte Integrodifferentialgleichung beschrieben, die man erhält, wenn für jede Teilschicht eine Energiebilanz aufgestellt wird. Für ein nichtgraues Medium wie Aerogel, wo also die optische Dicke von der Wellenlänge abhängt, ist diese Gleichung nur numerisch und mit grossem Aufwand lösbar. In dieser Arbeit wird eine halbempirische Lösung nach [Cap 85] verwendet, bei der graue Näherungslösungen

entsprechend dem spektralen Verhalten der optischen Dicke nach dem Konzept des effektiven Emissionsvermögens superponiert werden.

Auf Verwendung von selektiven Schichten mit tiefem Emissionsvermögen im IR-Bereich kann in Aerogelfenstern verzichtet werden, da keine wesentliche Verminderung des Strahlungstransportes eintritt. Die endliche optische Dicke des Aerogels im IR-Bereich führt schon zu einer Verringerung des Strahlungsanteils. Eine solche selektive Schicht ginge deshalb vor allem auf Kosten der Transparenz.

Im Hinblick auf die Nutzung der Sonnenenergie und die Transparenz im visuellen Bereich werden das solare und das visuelle Transmissionsvermögen ganzer Aerogelfenster-elemente vermessen.

Die Transparenz des Aerogels an sich ist im sichtbaren Bereich noch verbesserungswürdig: Rayleighstreuung führt zu einem bläulichen Schimmer; eine weisse Fläche erscheint daher in der Durchsicht blass gelblich, da nun ein gewisser Anteil am blauen Ende des Spektrums fehlt.

Aerogel verdankt übrigens seine hohe Transparenz der Tatsache, dass seine Struktur feiner als die Wellenlänge des Lichtes ist. Trotzdem kann gesagt werden, dass die bisher verfügbare Qualität von Aerogelblöcken die gewohnten Ansprüche, die heute an die visuelle Transparenz von Fenstern gestellt werden, noch nicht befriedigen kann. Denkbar ist darum vorläufig der Einsatz von Aerogel in Oberlichtern oder in transparenten Wärmedämmungen. Denselben Anwendungsbereich kann man Aerogelgranulatfenstern zuordnen, dessen Eigenschaften ebenfalls untersucht werden.

Bei den transparenten Wärmedämmungen werden (opake) Wände der Gebäudehülle mit dem transparenten hochisolierenden Material verkleidet. Die Solarstrahlung erreicht so die opake Mauerfläche und wird dort in Wärme umgewandelt. Wegen den guten wärmedämmenden Eigenschaften des Aerogels wird ein grosser Teil dieser Wärme ins Gebäude abgeleitet.

2 AEROGEL - EIN TRANSPARENTER WÄRMEISOLATOR

2.1 Herstellung von Aerogel

2.1.1 Überblick

2.1.1.1 Hauptschritte der Aerogelherstellung

Bei der Herstellung eines Aerogels können zwei Hauptschritte der Produktion unterschieden werden [Hen 90]:

- a) Herstellung eines mit einem Lösungsmittel durchsetzten Gels.
- b) Entfernung des Lösungsmittels durch einen speziellen Trocknungsvorgang (überkritische Trocknung).

Zur Herstellung eines Gels unterscheidet man verschiedene chemische Verfahren, die in einem "Sol-Gel"-Prozess eine gallertartige Substanz liefern, d.h. also eine Art dreidimensionales Sieb mit feinen skelettartigen Stegen, das durchsetzt ist mit einem Lösungsmittel. Durch ein geeignetes Trocknungsverfahren wird das Lösungsmittel entfernt, wobei die offene, fein vernetzte Struktur als Aerogel übrig bleibt.

Trocknung unter Normalbedingungen liefert wohl ein Aerogel, doch setzt ein Schrumpfungsprozess ein, wenn das Lösungsmittel aus dem Gerüst weicht. Ursache für diesen Schrumpfungsprozess ist die Oberflächenspannung an der Phasengrenze des aus der Aerogelstruktur weichenden Lösungsmittels: Die Oberflächenspannung reicht aus, um die zarte Aerogelstruktur zu zerstören. Endprodukt ist ein poröses Gebilde mit einem Porengehalt von ca. 50%.

Vermeiden lässt sich der unerwünschte Vorgang der Schrumpfung durch *überkritische Trocknung*. Bei genügend hoher Temperatur und Druck wird die kritische Schwelle eines Fluids überschritten. Dort verschwindet die Phasengrenze Flüssigkeit - Dampf und damit auch die Oberflächenspannung. Damit lassen sich Silikat-Aerogele mit Dichten bis hinunter auf 20 kg/m^3 herstellen, was einem Porengehalt von 99% entspricht. (Zum Vergleich: Trocknung unter Normalbedingungen lieferte ein Aerogel mit etwa halber Dichte von gewöhnlichem Glas, also etwa 1000 kg/m^3).

2.1.1.2 Methoden zur Herstellung von Aerogel

Die älteste bekannte Methode zur Herstellung eines Aerogels geht auf Kistler (~1930) zurück [Kis 31 und Kis 32] und besteht darin, Wasserglas (wässrige Lösung von Natriumsilikat) mit Salzsäure reagieren zu lassen. Dabei entsteht ein mit Siliziumdioxid durchsetztes Aquagel. Überkritische Trocknung erfordert hier noch ein Austausch des Wassers mit Alkohol, da Wasser die Gelstruktur bei den erforderlichen Temperaturen auflösen würde. Der Waschprozess zum Austausch des Lösungsmittels ist sehr arbeitsaufwendig.

Eine weniger umständliche Art der Aerogelherstellung geht auf Teichner [Tei 68] zurück und wurde in neuerer Zeit von einer französischen Gruppe in Lyon [Tei 86] wesentlich beeinflusst: Man geht von Tetramethoxisilan (TMOS) mit einer dosierten Menge Wasser aus. Durch Zufügen eines Katalysators entsteht Kieselsäure und Methanol. Aus der Kieselsäure spaltet Wasser ab. Dabei entstehen SiO_2 -Gruppen, die sich zu einem Gel vernetzen. Das Alkogel wird wiederum überkritisch getrocknet. Struktur und Dichte können gesteuert werden durch den Katalysator, den pH-Wert und das Mengenverhältnis der verwendeten Ausgangsstoffe, insbesondere der Lösungsmittelmenge Methanol. Dieses Verfahren wird am DESY in Hamburg und in Lund (Schweden) verwendet.

An der Universität in Berkley geht man aus von Tetraäthoxisilan (TEOS), das im Gegensatz zu TMOS nicht giftig ist. Man ersetzt dort ebenfalls das Lösungsmittel Äthanol durch das nichtexplosive CO_2 , dessen kritische Temperatur zudem relativ tief liegt (31 °C). Der Austausch des Lösungsmittels ist aber zeitaufwendig.

In Ludwigshafen bei BASF wird vor allem Aerogelgranulat [Bro 86] hergestellt: Schwefelsäure und Wasserglas werden zur Reaktion gebracht, indem die Ausgangsmaterialien aus einer Mischdüse in einen Auffangkolben gespritzt werden. Die dabei entstehenden Kügelchen enthalten als Nebenprodukte Alkalisalze, die durch Nachbehandlung und Waschen entfernt werden. Nach der überkritischen Trocknung liegt die Dichte der Kügelchen um 200 kg/m^3 herum. Das Verfahren ist kostengünstig, da billige Ausgangsprodukte verwendet werden.

In dieser Arbeit standen zwei Formen von Silikat-Aerogelen zur Verfügung:

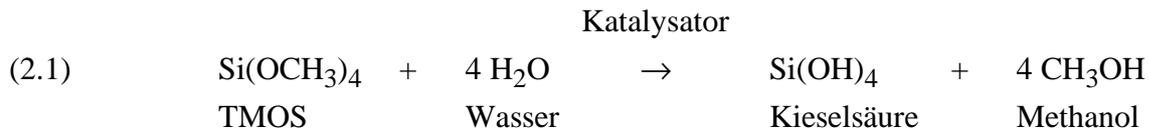
- Monolithische Aerogelkacheln hergestellt von der Airglass AB (Lund, Schweden).
- Aerogelgranulat hergestellt bei der BASF (Ludwigshafen, BRD).

Der Herstellungsvorgang ausgehend von einer gallertartigen Substanz zu einem trockenen offenporigen und fein vernetzten Gerüst soll hier für Aerogel in Blockform genauer erläutert werden:

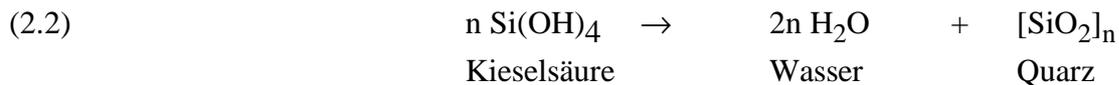
2.1.2 Detaillierte Beschreibung der Herstellung von Aerogel in Blockform

2.1.2.1 Herstellung des Alkogels

Ausgangsprodukte für die Aerogelkacheln aus Lund [Hen 90] sind Tetramethoxisilan (TMOS) im Lösungsmittel Methanol. Durch Zugabe einer genau dosierten Menge Wassers wird das Silan hydrolysiert:



Es entsteht Kieselsäure und Methanol. Die Hydrolyse wird gesteuert durch einen Katalysator. Gleichzeitig vernetzen die Kieselsäuremoleküle miteinander unter Freisetzung von weiteren Wassermolekülen:



Bei diesem Vorgang der Dehydrierung entstehen über das ganze Volumen Kerne aus sich vernetzenden Kieselsäuremolekülen. Diese Kerne bilden mikroskopische Cluster, die sich wiederum zu grösseren Einheiten zusammenschliessen, bis ein zusammenhängender Gelkörper vorliegt. Die Bildung der primären Quarzteilchen wird durch den pH-Wert des Lösungsmittels beeinflusst. Der Anteil des Lösungsmittels bestimmt ebenfalls die Porosität des räumlichen Netzes und deshalb auch die Dichte und den Brechindex.

Nach der Bildung des Gels gibt es immer noch Siliziumkörner, die noch nicht vernetzt sind. Eine vollständige Polymerisation erfolgt erst in einer Zeit der Grössenordnung von Tagen. Der Polymerisationsprozess erfolgt über Siloxangruppen (Si-O-Si) und kann gestört werden durch übrigbleibendes Wasser bei der Dehydrierung. Zusammen mit Silanolgruppen (Si-OH) kann dieses Wasser "Wasserbrücken" bilden und die Vernetzung zwischen den Quarzkörnern stören. Es besteht auch die Möglichkeit, dass sich Methanol-Moleküle mit Silanolgruppen vernetzen.

Um eine gute Transparenz zu erhalten, sollten Dichtefluktuationen möglichst gering sein. Im Aerogel geraten jedoch einige Quarzkörner oder Cluster von Körnern so gross, dass blaues Licht gestreut wird (Rayleigh-Streuung). Durch erhöhte Zugabe des Katalysators können zwar die Anzahl der Keime erhöht werden. Damit werden eine höhere Anzahl und kleinere Körner erzielt, doch gibt es hier eine Grenze, indem die Reaktion exotherm abläuft und zuviel Wärme in zu kurzer Zeit produziert wird. Das Problem der überschüssigen Wärme

kann gemildert werden, indem man von einer sehr kalten Lösung ausgeht, oder die Hydrolyse sowie die Dehydrierung in zwei getrennten Schritten ablaufen lässt.

Zur vollständigen Hydrolyse eines Silanes braucht es 4 Wassermoleküle. Bei der Dehydrierung werden wieder 2 Wassermoleküle frei, so dass im Minimum $4 - 2 = 2$ Wassermoleküle pro Silanmolekül zugefügt werden müssen. In der Praxis wird jedoch etwa doppelt soviel Wasser zugesetzt, als diese stöchiometrische Bedingung angibt, um sicher zu sein, dass die Hydrolyse vollständig ist.

Der Siliziumträger TMOS, das Lösungsmittel Methanol, das Wasser zur Hydrolyse sowie der Katalysator Ammoniak werden einige Minuten gemischt und anschliessend in eine Gussform gegossen. Die oben beschriebenen Reaktionen laufen in diesem "Kuchenblech" ab. Nach Ablauf des "Sol-Gel"-Prozesses wird das überschüssige Wasser ausgewaschen, indem die Gussform mit dem wasserhaltigen Alkogel über mehrere Tage in ein Methanolbad gegeben wird. Wasser kann den überkritischen Trocknungsprozess stören und hat eine schlechtere Transparenz des Endproduktes zur Folge.

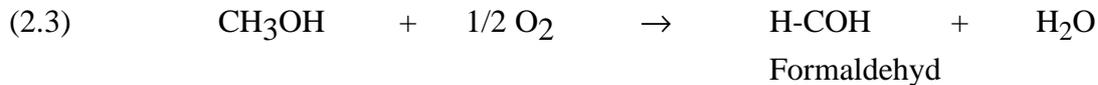
2.1.2.2 Überkritische Trocknung

Der kritische Punkt von Methanol liegt bei 239,4 °C und 80,9 bar. Zur Vermeidung der Phasengrenze, die in den Poren zur Bildung von Menisken führen würde, wird Druck und Temperatur des Alkogels über den kritischen Punkt hinaus gebracht und anschliessend der Dampf durch isotherme Expansion wieder abgelassen. Die Gussform mit dem Alkogel wird dazu in einen Druckkessel oder "Autoklaven" gebracht. Damit ein ausreichender Druck aufgebaut werden kann, muss zusätzliches Methanol beigefügt werden. Bei der isothermen Expansion diffundiert das Methanol aus der Gelstruktur. Wegen der endlichen Viskosität des Methanols darf die Absenkung des Druckes nicht zu schnell erfolgen, da sich sonst in den Kacheln ein Druckgradient aufbauen würde, der zum Bruch führen kann. Typische Druckabsenkraten sind etwa 5 bis 10 bar pro Stunde [Hen 90].

2.1.2.3 Wärmebehandlung

Eine chemische Analyse zeigt, dass etwa 3,4% Kohlenstoff und 0,9% Wasserstoff (Gewichtsprozent) in der Aerogelstruktur haften bleiben. Eine mögliche Erklärung ist, dass über jedem Quarzpartikel eine Monoschicht von Methanol liegen bleibt. Um diese Schicht loszuwerden, wird das Aerogel für einige Stunden über 500 °C erhitzt. (Heiz- und Kühlrate

<35 °K/h zur Vermeidung von Brüchen). Erfolgt diese Erhitzung in Luft, so wird das Methanol oxidiert. Oxidation des Methanols kann zur Bildung von organischen Säuren führen:



Nach der Wärmebehandlung findet man noch etwa 3% Kohlenstoff und 0,7% Wasserstoff [Hen 90].

2.2 Struktur

2.2.1 Übersicht

Aerogele, die für den Einsatz in Fenstern gedacht sind, haben folgende Eigenschaften zu erfüllen: Mechanische Stabilität, hohe optische Transparenz und geringe thermische Leitfähigkeit. Jede dieser Eigenschaften ist eng mit der Struktur des Aerogels verknüpft und es ist klar, dass die erwähnten Anforderungen zum Teil gegensätzliche Struktureigenschaften erfordern. Es muss also hinsichtlich der Struktureigenschaften ein Kompromiss gesucht werden. Nachdem im vorhergehenden Abschnitt 2.1 der Herstellungsprozess und damit die Steuerung der Struktureigenschaften beschrieben wurde, soll hier über die Struktur selbst und über die experimentellen Methoden zu ihrer Festlegung berichtet werden.

Die Standardmethoden zur Charakterisierung der Porosität sind die *Quecksilber- porosimetrie* sowie die *Stickstoff-Adsorption*. Diese ergeben wohl eine Aussage über die Größenverteilung der Poren, doch sind diese Aussagen zum Teil modellabhängig. Zudem ergibt sich besonders im Gebiet der feinen Porosität keine quantitative Einsicht in die Struktur.

Als direkte Beobachtungsmethode steht die *Elektronenmikroskopie* zur Verfügung. Dort ergibt sich die Schwierigkeit, dass Aerogelproben elektrische und thermische Isolatoren sind; die Proben neigen unter Bestrahlung zur Sinterung und müssen je nach dem beschichtet werden. Ausserdem ist es schwierig, eine dreidimensionale Information aus zweidimensionalen Projektionen oder Schnitten zu erhalten.

Die Einschränkungen der erwähnten experimentellen Methoden ist auch Ursache dafür, dass eigentlich wenig Information über die Struktur von Aerogelen oder über die chemischen

und physikalischen Faktoren, die diese Struktur festlegen, zusammengetragen wurde, angesichts der Tatsache, dass Aerogele seit Jahrzehnten bekannt sind.

Als neuere Methode, die eine gemittelte dreidimensionale Information über die Struktur liefert, kann die *Kleinwinkelstreuung von Röntgenstrahlung* oder *Neutronen* gelten (SAXS bzw. SANS). Und zwar sind hier nicht die Streutechniken an sich neu, sondern die Methoden und Modelle zu deren Auswertung: Die *fraktale Geometrie* liefert neue Einsichten in poröse Materialien. Sie erlaubt, zwischen Polymeren und kolloidalen Objekten zu unterscheiden, beispielsweise weil sie in zwei getrennte Klassen zerfallen, genannt Volumen- und Oberflächenfraktale. Als neuer Strukturparameter taucht die fraktale Dimension auf. Damit kann auf der gesamten Längenskala des Objektes der Aufbau der Struktur beschrieben werden.

2.2.2 Standard-Verfahren zur Ermittlung der Porosität

2.2.2.1 Quecksilberporosimetrie

Das spezifische Porenvolumen v_p [m³/kg] kann aus der wahren Dichte ρ_t und der scheinbaren Dichte ρ_a wie folgt errechnet werden [Bro 86]:

$$(2.5) \quad v_p = \frac{1}{\rho_a} - \frac{1}{\rho_t} \quad .$$

Die wahre Dichte ρ_t wird pyknometrisch durch Helium-Verdrängung bestimmt und liegt bei Aerogelproben in der Gegend der Dichte von gewöhnlichem Quarzglas, also bei rund 2000 kg/m³. Die scheinbare Dichte ρ_a wird ebenfalls pyknometrisch bestimmt, diesmal aber durch Volumenverdrängung von Quecksilber bei Normaldruck. Das Quecksilber dringt bei Normaldruck nur soweit ein, dass die Oberflächenrauigkeit bis zu einem Radius von ca. 7500 nm berücksichtigt wird.

Der Porenanteil in Volumenprozent, d.h. die sogenannte *Porosität* π [%] ergibt sich dann mit:

$$(2.6) \quad \pi = v_p \cdot \rho_a \quad .$$

Zur Ermittlung der *Porengrößenverteilung* wird das evakuierte poröse System in ein Quecksilberbad getaucht, dessen Druck verändert werden kann. Nimmt man als Modell zylindrische Poren an, so ist der Zusammenhang zwischen dem angelegten Druck p und dem

Porenradius r , bis zu dem das Quecksilber in die Probe eindringt, gegeben durch die Washburngleichung:

$$(2.7) \quad p \cdot r = 2 \cdot \sigma \cdot \cos \Theta \quad ,$$

wo $\sigma = 0,473 \text{ N/m}$ die Oberflächenspannung von Quecksilber und $\Theta = 141,3^\circ$ der Benetzungswinkel zwischen dem Quecksilber und dem Festkörper ist. Die Methode erlaubt die Messung von Porenradien zwischen 1,7 - 7000 nm.

Mit demselben Modell zylindrischer Poren kann auch die *Porenoberfläche* bestimmt werden, indem die frisch geformte Quecksilberoberfläche gegeben ist durch:

$$(2.8) \quad dA = -\frac{p}{\sigma \cdot \cos \Theta} \cdot dV \quad .$$

Die totale Porenoberfläche ergibt sich aus Integration über das Volumen zwischen V_{\min} und V_{\max} .

2.2.2.2 Porenverteilung aus Stickstoff-Adsorption

Die Porengrößenverteilung unterhalb 60 nm kann auch durch Adsorption-Desorption von N_2 bestimmt werden. Als Modell nimmt man zunächst an, dass die Adsorption der Stickstoffmoleküle auf Aerogel durch eine BET-Isotherme beschrieben wird. Die BET-Isotherme gibt bei fester Temperatur die adsorbierte Gasmenge n in Funktion des Gasdruckes p an. Durch lineare Darstellung der BET-Isothermen im Druckbereich $0,05 < p/p_s < 0,3$ lassen sich darin die Konstante C sowie die Gasmenge einer adsorbierten monomolekularen Gasschicht n_m bestimmen [Bru 45]:

$$(2.9) \quad \frac{p}{n \cdot (p_s - p)} = -\frac{1}{n_m \cdot C} + \frac{C-1}{n_m \cdot C} \cdot \frac{p}{p_s} \quad ,$$

vorausgesetzt, der Sättigungsdampfdruck p_s des Adsorptives ist bekannt. Bei bekannter Kondensationswärme lässt sich übrigens aus C auch die Adsorptionswärme berechnen. Die *spezifische Oberfläche* A/m [m^2/kg] bestimmt sich mit:

$$(2.10) \quad A/m = n_m \cdot \alpha / m \quad .$$

Darin ist $\alpha = 0,162 \text{ nm}^2$ die spezifische Oberfläche von Stickstoff und m die Masse der Probe.

Zur Bestimmung der *Porenradienverteilung* werden wiederum zylindrische Poren angenommen und die Kelvin Methode der kapillaren Kondensation von Gasen angewandt [Gre 67]. Danach werden zunächst die feinen Poren angefüllt.

2.2.3 Direkte Beobachtungstechniken

Die Mikrostruktur des Aerogels ist kleiner als die Wellenlänge des Lichtes. Wegen ihres hohen Auflösungsvermögens drängen sich deshalb die *Transmissions-* und die *Rasterelektronenmikroskopie* auf (TEM bzw. REM):

2.2.3.1 Rasterelektronenmikroskopie

Das folgende Bild zeigt eine Aufnahme, die mit einem Rasterelektronenmikroskop (Stereo Scan S4, Cambridge Instruments, England) gemacht wurde:

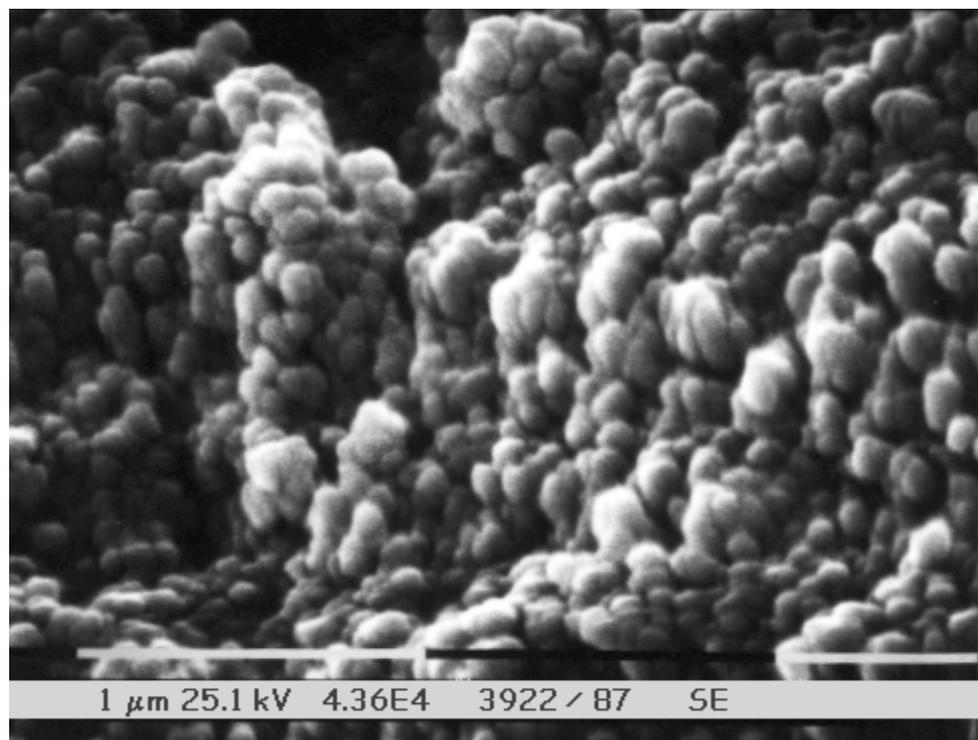


Abb. 2.1 REM-Aufnahme einer TMOS-Aerogelprobe, die mit Gold bedampft wurde.

Auf dieser Aufnahme lässt sich eine Teilchengröße von 80 nm eruieren. Diese Größe muss jedoch als obere Grenze gelten, da die Probe vor der Aufnahme beschichtet werden muss und eine solche Schicht eine Dicke aufweist, die vergleichbar mit der Teilchengröße selbst ist [Tew 86]. Unter anwachsender Auflösung kann es durch die erhöhte Intensität des Elektronenstrahls zusätzlich zu einer Vergrößerung der Teilchen durch Sinterung kommen. Grund hierfür ist die schlechte Wärmeleitfähigkeit der Probe, die zu einer Sinterung in Form einer Stufenbildung parallel zur Scanrichtung führt: Durch die Sinterung wird bei fortschreitendem Strahl ein Gebiet geschaffen, das die Strahlungsenergie besser abtransportiert, was die fortlaufende Bildung von Stufen mit etwas reduzierter Sinterung erlaubt. Deutlich sichtbar ist dieser Vorgang auf der folgenden Aufnahme:

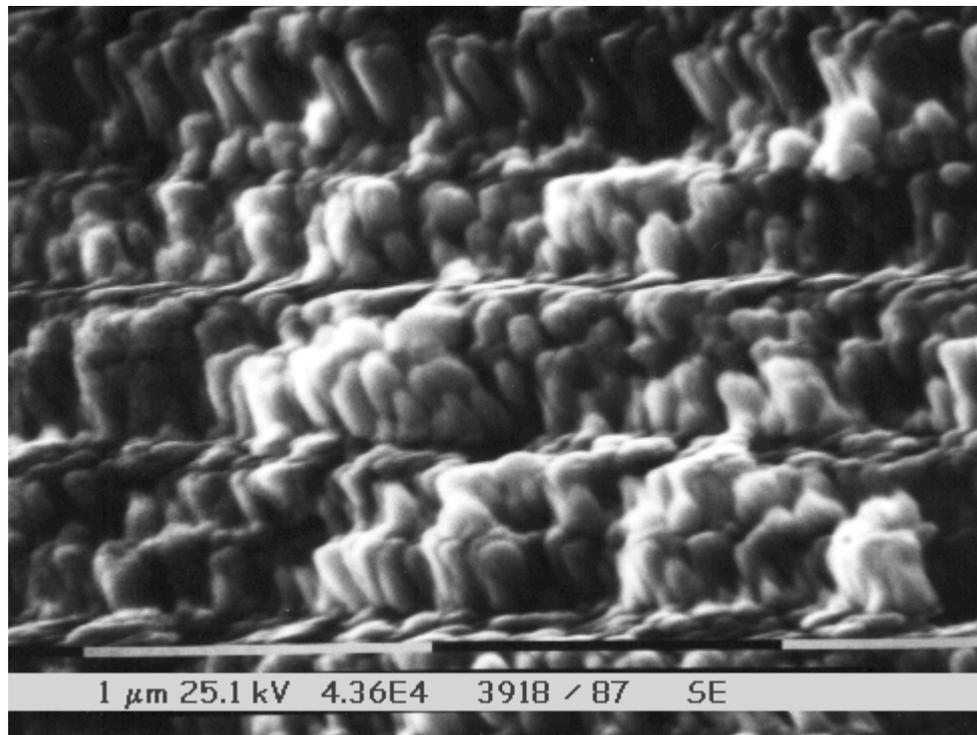


Abb. 2.2 Stufenbildung einer TMOS-Aerogelprobe infolge Sinterung durch den Elektronenstrahl des REM.

2.2.3.2 Transmissionselektronenmikroskopie

Zur Auflösung der Struktur von Aerogelproben sind sehr dünne Gebiete mit wenigen Teilchenschichten notwendig, die man vorzugsweise an den Rändern von feinen Aerogelstücken findet. Nur dort lassen sich aus dem zweidimensionalen Abbild Schlüsse ziehen auf die fein vernetzte Struktur des Aerogels. Auch hier besteht die Gefahr der Sinterung, die

durch Verwendung von Strahlung geringer Intensität gemildert wird. Man erkennt dann auf solchen Aufnahmen, dass die Teilchen feine Ketten bilden, die sich an mehreren Stellen zu einem feinen Gerüst vernetzen [Tew 86]. Es können Teilchengrößen unterhalb 5 nm eruiert werden.

2.2.4 Kleinwinkelstreuung und fraktale Geometrie als Modell zur Auswertung

Die *fraktale Geometrie* liefert die Möglichkeit, Streudaten von Aerogelproben zu interpretieren und Strukturparameter zu extrahieren [Sae 89]. Es hat sich im Laufe der Zeit herausgestellt, dass Aerogele in gewissen Längenbereichen fraktale Strukturen aufweisen. Innerhalb gewisser Grenzen der Längenskala ergibt sich so eine Selbstähnlichkeit oder Ununterscheidbarkeit der Struktur. Man spricht auch von einer Skaleninvarianz der Struktur. In geeignet durchgeführten Streumessungen können solche Strukturbereiche unterschieden werden, indem die Streuintensität in den jeweiligen Längenbereichen einen charakteristischen Verlauf zeigt:

Bei gegebenem Streuvektor K ist man sensibel auf Struktureinheiten der Länge:

$$(2.11) \quad L = 2\pi / K \quad .$$

Der Streuvektor hängt ausserdem mit dem Streuwinkel Θ in folgender Weise zusammen:

$$(2.12) \quad K = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \sin \frac{\Theta}{2} \quad .$$

Durch Aenderung des Streuwinkels wird deshalb die Probe über eine Längenskala untersucht, die festgelegt ist durch $1 / K$.

Verwendet man als Streumedium *Röntgenstrahlung*, so wird bei kleinen Streuwinkeln gerade der Längenbereich überstrichen, der zur Auflösung der Struktureigenschaften notwendig ist und der ungefähr zwischen 0,5 und 50 nm liegt. Entsprechendes Auflösungsvermögen kann auch mit *Neutronenstrahlung* und mit gewissen Einschränkungen auch mit Licht erzielt werden. Die Streuung von Röntgenstrahlung oder Neutronen unter kleinen Winkeln sind jedoch die zur Strukturanalyse geeignetsten Mittel, indem sich eine Auflösung bis hinunter zu atomaren Dimensionen erzielen lässt.

Zur Interpretation der Streudaten verwendet man die Eigenschaft, dass die Streuintensität I einem Potenzgesetz in dem Streuvektor K folgt:

$$(2.13) \quad I \propto K^{-2D+Ds} \quad .$$

Die Grösse $P = -2D + D_s$ heisst *Porod-Steigung*. Darin wird mit D die fraktale Dimension eines Volumenintegrals, mit D_s diejenige eines Oberflächenintegrals bezeichnet. Aus einer logarithmischen Darstellung der Streuintensität I gegen den Streuvektor K kann die Porod-Steigung ermittelt werden (Abb. 2.3). Damit ist die Möglichkeit gegeben, auf der ganzen Längenskala zwischen Volumen- und Oberflächenfraktalen zu unterscheiden: Für Volumenfraktale gilt nämlich $P = -D = -D_s$, wobei D zwischen 1 und 3 liegt. Demgegenüber lautet bei Oberflächenfraktalen der Exponent in (2.13) $P = -6 + D_s$, worin D_s zwischen 2 und 3 liegt.

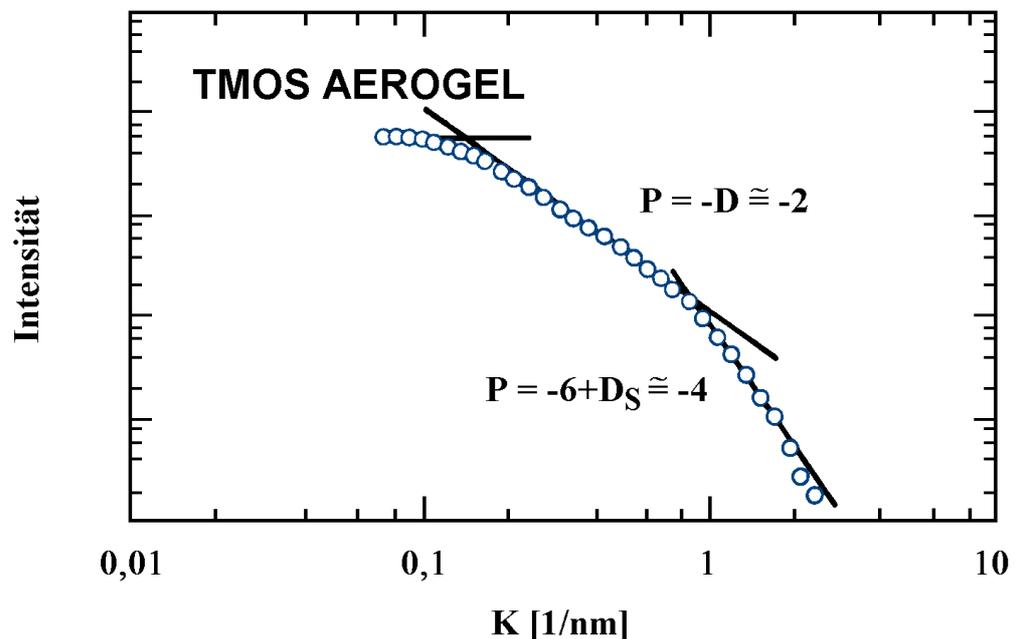


Abb. 2.3 Streuintensität I als Funktion des Streuvektors K für die Streumessung einer Aerogelprobe mit Röntgenstrahlen unter kleinen Winkeln nach [Sae 89].

Bei Aerogel erhält man aus einer solchen Streumessung folgenden Befund: Oberhalb einer *Korrelationslänge* ξ hängt die Intensität I nicht mehr vom Streuvektor ab. Dies entspricht einer uniformen, nicht fraktalen Struktur in einem langreichweitigen Bereich. Unterhalb dieser Korrelationslänge ξ kann man zwei Gebiete mit fraktalen Eigenschaften unterscheiden: In einem Bereich mittlerer Längenskala schliesst ein Gebiet an, in dem sich die Aerogelprobe wie ein *Volumenfraktal* der Dimension $D \approx 2$ ($P \approx 2$) verhält. Dieses Gebiet eines selbstähnlichen Netzwerkes erstreckt sich etwa über eine Grössenordnung bis zu einer Schwelle a , wo bei kleiner Längenskala ein Verhalten gleichförmiger Dichte einsetzt. In diesem kurzreichweitigen Gebiet beträgt die Porod-Steigung $P \approx -4$, was einem *Oberflächenfraktal* der Dimension $D_s \approx 2$ - also einem solchen "glatter" Oberfläche - entspricht. Damit werden in diesem Bereich die kurzreichweitigen chemischen Konfigurationen wiederge-

spiegelt [Sae 86]; die Schwelle a hat somit die Bedeutung der *mittleren Teilchengrösse* der kompakten kolloidalen Partikel, die sich selbst zu einer kettenförmig vernetzten Struktur aufreihen.

Im allgemeinen können somit aus einer solchen Messung drei Parameter extrahiert werden:

- ❑ Die *Korrelationslänge* ξ , oberhalb der die Struktur als uniformes Netzwerk erscheint. Sie gibt die obere Grenze der fraktalen Struktur an und kann so mit der mittleren Porengrösse identifiziert werden.
- ❑ Die *mittlere Teilchengrösse* a . Sie gibt die mittlere Grösse der Teilchen an, aus denen sich das Netzwerk zusammenfügt.
- ❑ Die *fraktale Dimension* D bzw. D_s der Struktureinheiten.

Konsistent mit dem Befund einer solchen Streumessung gemäss Abb. 2.3 ist etwa folgendes Bild der Struktur:

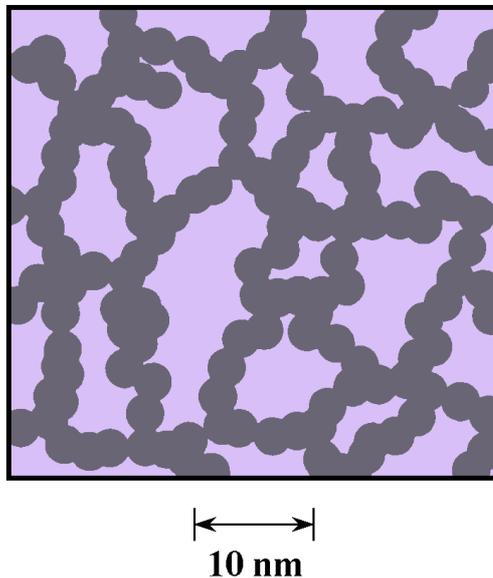


Abb. 2.4 Struktur einer Aerogelprobe, wie sie sich aus dem Streuprofil in Abb. 2.3 ergibt nach [Sae 89].

Systematische Untersuchungen zeigen, dass der fraktale Charakter der Aerogele mit dem pH-Wert und der Konzentration der Ausgangslösung ändert [Vac 89]. Er hängt also von der Steuerung des Sol-Gel-Prozesses ab. Die Abbildungen 2.3 und 2.4 geben die Situation einer basisch katalysierten TMOS-Aerogelprobe mit aggressiver Hydrolyse wieder [Sae 89].

Dort findet man typischerweise eine mittlere Teilchengröße $a \cong 2 \text{ nm}$ und eine Korrelationslänge von $\xi \cong 10 \text{ nm}$.

2.2.5 Zusammenfassende Darstellung der experimentellen Befunde

Die Daten aus den verschiedenen Messverfahren sind nicht leicht in ein konsistentes Bild über die Aerogelstruktur einzuordnen. Die Aussagen der *Standardverfahren* zur Ermittlung der Porosimetrie beruhen auf dem vereinfachenden Modell zylindrischer Poren und ergeben in diesem modellabhängigen Rahmen Aufschluss über scheinbare und wahre Dichte, Porosität, Porengrößenverteilung, spezifische Oberfläche und mittlere Porengröße.

Die direkte Beobachtungstechnik der *Elektronenmikroskopie* ist wohl ein wertvolles Hilfsmittel zur Ermittlung des Aerogelaufbaues, doch ergeben sich aus der thermischen und elektrischen Isolierwirkung des Materials einige Schwierigkeiten: Die Proben neigen unter Bestrahlung zur Sinterung und müssen bei REM-Aufnahmen zusätzlich beschichtet werden.

Am besten geeignet zur Strukturanalyse erscheint deshalb die *Kleinwinkelstreuung von Röntgenstrahlen* oder *von Neutronen*. Dies vor allem seit mit der *fraktalen Geometrie* ein Modell zur Verfügung steht, mit dessen Hilfe aus Streumessungen Strukturparameter extrahiert werden können.

Aus einer Art Synthese der Resultate aller Experimentiertechniken ergibt sich ein Bild über den Aerogelaufbau: Ausgehend von der Kleinwinkelstreuung ergeben sich auf der Längenskala der Aerogelstruktur zwei Werte, durch die die Struktur charakterisiert wird: Die *Korrelationslänge* ξ und die *mittlere Teilchengröße* a . Danach wird die Struktur unterhalb von ξ in zwei Längenbereiche mit unterschiedlichen fraktalen Eigenschaften unterteilt. Die Existenz und die Eigenschaften dieser Strukturbereiche werden gestützt und ergänzt durch Befunde der anderen Messverfahren.

Danach fügen sich Primärteilchen mit gewöhnlichem Quarzglas ähnlicher Dichte (diese liegt bei 2190 kg/m^3) zu kolloidalen Sekundärteilchen der mittleren Teilchengröße a zusammen. Diese Sekundärteilchen besitzen etwa die halbe Dichte von Quarzglas, sind "glatte" *Oberflächenfraktale* mit einer hohen *spezifischen Oberfläche*, die um $700 \text{ m}^2/\text{g}$ herum liegt. Die Sekundärteilchen schliesslich reihen sich zu einer Tertiärstruktur bestehend aus räumlich verzweigten und vernetzten Ketten der Korrelationslänge ξ auf, oberhalb der die Struktur uniform und nichtfraktal erscheint. Im mittleren Längenbereich $a < L < \xi$ zeigt sich das Aerogel als *Volumenfraktal*; die Korrelationslänge ξ kann daher mit der mittleren Porengröße identifiziert werden. Aerogel verdankt seine hohe Porosität, die typischerweise um 90% herum liegt, sowie seine geringe Dichte, die rund zwanzigmal geringer ist als diejenige von normalem Glas, dieser Tertiärstruktur. Während sich die Durchmesser der Primärteilchen im atoma-

ren Masstab unterhalb 1 nm bewegen, liegt der Durchmesser der Sekundärteilchen um 2 nm herum. Die Korrelationslänge liegt typischerweise in der Größenordnung von 10 nm.

Bei dieser Größenordnung besitzt nach *Stickstoffadsorptionsmessungen* [Die 86] die Porengrößenverteilung eine erhöhte Wahrscheinlichkeit. Poren unterhalb 60 nm tragen danach mit einem spezifischen Volumen von etwa $1,5 \text{ cm}^3/\text{g}$ zum Volumen bei. Nachdem das spezifische Porenvolumen mit steigender Dichte ($100 - 270 \text{ kg/m}^3$) von 9 auf $3 \text{ cm}^3/\text{g}$ abnimmt, folgt, dass sich der Volumenanteil der Poren unterhalb 60 nm zwischen 15 - 50% bewegt. Speziell bei Proben geringer Dichte findet man so den grössten Volumenanteil bei Poren oberhalb 60 nm.

Diese Werte gelten für basisch katalysierte TMOS-Aerogelproben und können auf granulares Aerogel nur als Größenordnung übertragen werden [Bro 86].

Gestützt wird das Bild einer offenporigen, kettenförmig vernetzten Struktur durch Aufnahmen mit dem *Elektronenmikroskop*. Man findet Teilchendurchmesser unterhalb 5 nm. Auch die Größenordnung der Korrelationslänge bzw. Porendurchmesser wird bestätigt [Tew 86].

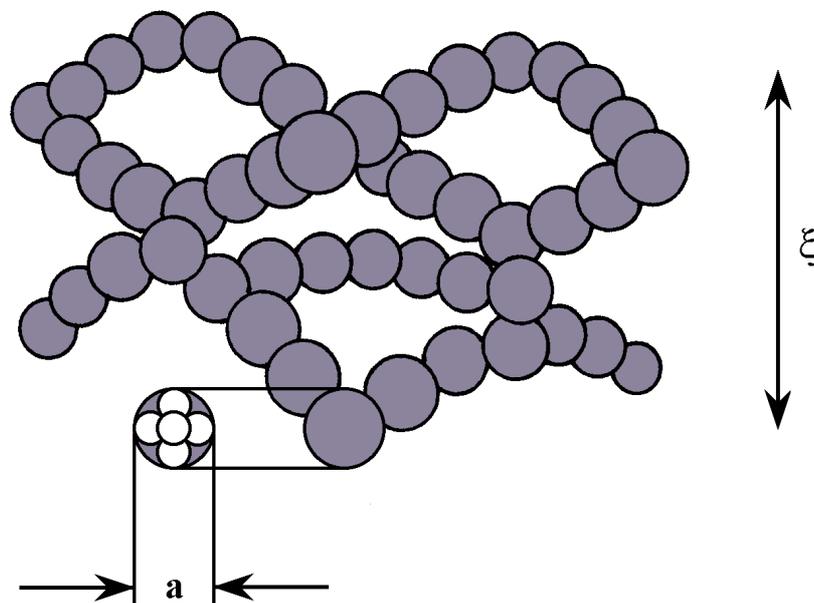


Abb. 2.5 Offenporige, räumlich vernetzte Aerogelstruktur bestehend aus Sekundärteilchen der mittleren Teilchengröße a , die sich zur feinmaschigen Tertiärstruktur der Korrelationslänge ξ aufreihen. Die Sekundärteilchen besitzen selbst eine innere Struktur, indem sie aus Primärteilchen zusammengefügt werden.

2.3 Eigenschaften von Aerogel

2.3.1 Übersicht

Das Problem, ausgehend von einer bekannten Struktur die physikalischen Eigenschaften eines Materials zu berechnen, ist im Fall von Aerogel mit seinem offenporigen, fein vernetzten Gerüst nur näherungsweise zu bewältigen. Man kommt hier also nicht darum herum, die Eigenschaften zu messen. Zur Gewinnung eines theoretischen Ansatzes geht man von vereinfachenden Modellen aus, die sich dadurch rechtfertigen, dass sie die gemessenen Eigenschaften zumindest tendentiell wiedergeben.

Neben solchen Modellen, die also etwa eine Abschätzung des Wärmetransportes oder der mechanischen Eigenschaften erlauben, ist vor allem von Interesse, wie diese Eigenschaften von der Dichte, d.h. vom wichtigsten Materialparameter, abhängen. Ansatzweise lässt sich dazu die Aerogelstruktur wie ein *Perkolationsmuster* behandeln, das die kritische Perkolationsschwelle überschritten hat und dessen Tertiärstruktur deshalb ein zusammenhängendes Clusternetz bildet. Die elektrischen, mechanischen und thermischen Eigenschaften dieser theoretischen Gebilde sollten mit dem Überschuss über die kritische Dichte skalieren. Die Erfahrung zeigt tatsächlich, dass die erwähnten Eigenschaften bei Aerogelen innerhalb gewisser Grenzen mit dem Dichteüberschuss skalieren. Solche Skalierungsgesetze sind deshalb nützlich, da sie zur Optimierung der Materialeigenschaften in einem gegebenen Anwendungsbereich herangezogen werden können.

Wenn man an das feine Gerüst und die hohe Porosität denkt, so erstaunt es nicht, dass Aerogele gegenüber Quarzglas einen sehr tiefen *Elastizitätsmodul* aufweisen. Das weiche Verhalten lässt sich qualitativ feststellen, wenn man Aerogelstücke zwischen den Fingerspitzen zusammendrückt. Der tiefe Elastizitätsmodul ist auch Ursache für die für ein anorganisches Material tiefste *Schallgeschwindigkeit* zwischen 100 - 300 m/s.

Das *dynamische Verhalten* von Aerogel wird geprägt durch die drei charakteristischen Längenbereiche, die man auf der Längenskala der Struktur vorfindet. Es ergeben sich so auf der Längenskala unterschiedliche Schwingungsregime. Namentlich sind dies mit ansteigender Frequenz: Phononen, Fraktonen und Teilchenmoden.

Man erhält so eine gegenüber gewöhnlichem Quarzglas um Größenordnungen erhöhte *Zustandsdichte*, die man sich plausibel machen kann, wenn man sich die vielen feinen Struktureinheiten vorstellt, die gegeneinander schwingen können. Es ergibt sich so bei tiefen Temperaturen eine drastisch erhöhte *Wärmekapazität*.

Für den *Wärmetransport* verantwortlich sind die nichtlokalisierten akustischen Phononen. Neben dieser Gerüstleitung sind jedoch auch die Beiträge des Porengases und der Strah-

lung zu berücksichtigen, durch die die Beschreibung der Wärmeleitung wesentlich kompliziert wird.

Im optischen Bereich zeigt Aerogel eine hohe *Transparenz*. Zusätzlich beobachtet man jedoch ein Streuverhalten, das gut als *Rayleigh-Streuung* zu interpretieren ist. Beides kann auf die mikroporöse Struktur, deren charakteristische Länge kleiner als die Wellenlänge des Lichtes ist, zurückgeführt werden.

2.3.2 Aerogel als perkolierendes System

2.3.2.1 Zur Perkolationstheorie

In der Perkolationstheorie [Sta 87] geht man aus von einem grossen regulären (z.B. kubischen) Gitter, dessen jede Elementarzelle zufällig mit einer Wahrscheinlichkeit p besetzt wird und zwar jeweils unabhängig von deren Nachbarzellen. Auf diese Weise werden zusammenhängende Cluster gebildet, deren Grösse mit p anwächst. Wenn der Anteil der besetzten Zellen p klein ist, werden nur endliche Cluster gebildet. Für jeden Gittertyp gibt es eine kritische Wahrscheinlichkeit oder *Perkolationsschwelle* p_c , an dem in einem unendlichen Gitter ein unendliches Netzwerk erscheint; eine durchgehend zusammenhängende Struktur wird gebildet.

Theoretische Betrachtungen und Computersimulationen zeigen, dass verschiedene Eigenschaften oberhalb und in der Nähe der Perkolationsschwelle p_c mit einem Potenzgesetz in $(p - p_c)$ skalieren. Dies gilt zunächst für die Perkulationswahrscheinlichkeit P , definiert durch den Anteil der besetzten Zellen, der zu dem unendlichen Cluster gehört:

$$(2.14) \quad P \propto (p - p_c)^\beta \quad .$$

Aehnliches gilt für die Leitfähigkeit und die elastischen Konstanten eines perkolierenden Systems:

$$(2.15) \quad \sigma \propto (p - p_c)^t \quad .$$

$$(2.16) \quad E \propto (p - p_c)^\tau \quad .$$

Es leuchtet ein, dass die Perkulationswahrscheinlichkeit P in der Nähe der Perkolationsschwelle p_c rascher ansteigt als die Leitfähigkeit σ , indem gewisse Zellen zunächst wohl zu der durchgehend zusammenhängenden Struktur gehören können und so einen Beitrag zu P leisten, ohne aber besonders zur Leitfähigkeit beizutragen, indem sie noch zu einem isolierten

Seitenast des Clusters gehören. Wegen $p - p_c < 1$ ist also sicher $\beta < t$. In theoretischen Arbeiten (Quellen erwähnt in [Dep 85]) konnte gezeigt werden, dass, wenn man die nicht-isotrope Natur der elastischen Wechselwirkung zwischen Nachbarn berücksichtigt, der elastische Exponent τ signifikant grösser ist als t und dass deshalb die beiden Eigenschaften zu zwei verschiedenen "Universalitätsklassen" gehören. In der Perkolationstheorie ist neben der Grösse dieser Exponenten auch deren Beziehung untereinander von Interesse. Zur Untermauerung der theoretischen Arbeiten gibt es auch experimentelle Untersuchungen an zwei- oder dreidimensionalen perkolierenden Modellsystemen [Ben 84 und Dep 85].

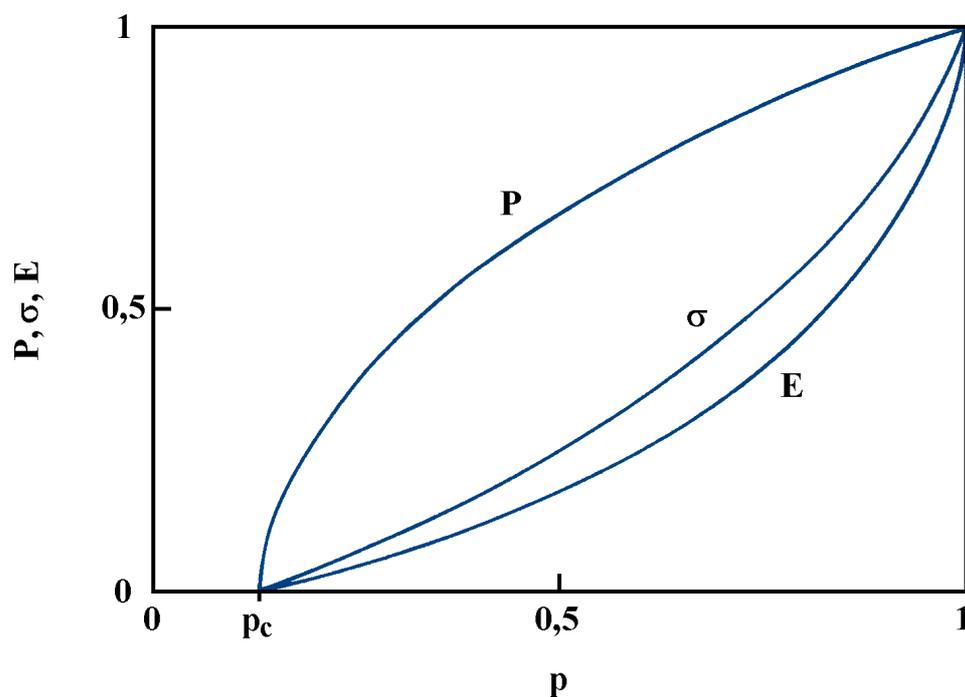


Abb. 2.6 Verhalten der Perkulationswahrscheinlichkeit P , der Leitfähigkeit σ , und des Elastizitätsmoduls E einer perkolierenden Struktur mit der Besetzungswahrscheinlichkeit p nach [Sta 87] (schematisch).

2.3.2.2 Anwendung der Perkolationstheorie auf Aerogel

Nachdem die Besetzungswahrscheinlichkeit p auch den Volumenanteil der besetzten Zellen angibt, ergibt sich von selbst, $1 - p$ mit der Porosität π des Aerogels zu identifizieren. Die leichtesten Aerogele besitzen eine Porosität von 0,99, was einer kritischen Perkolationsschwelle von $p_c \cong 0,01$ entspricht. Es liegt deshalb nahe [Gro 86a], $p_c \cong 0$ zu setzen. In dieser Näherung skalieren die Materialeigenschaften mit p bzw. mit der Dichte ρ , statt mit dem Dichteüberschuss $\rho - \rho_c$, was die Auswertung der Messungen erleichtert: In doppellogarith-

mischer Auftragung der Messungen ergeben sich Geraden, aus deren Steigung der Exponent herausgelesen werden kann.

Auf diese Weise wurde gezeigt [Nil 86], dass die Festkörperleitung in gewissen Grenzen mit der Dichte hoch 1,6 skaliert:

$$(2.17) \quad \lambda_s \propto \rho_a^t, \quad t \cong 1,6.$$

Dabei wurden die Aerogelproben bis zu einer Dichte von nichtporösem Quarzglas komprimiert. Bei höheren Dichten werden auch die primären Quarzteilchen deformiert. Man findet dort einen Exponenten $t \cong 2,6$. Im Bereich $t \cong 1,6$ erlaubt das Skalierungsgesetz eine Abschätzung der Festkörperleitung auch für unkomprimierte Aerogelproben.

Auf dieselbe Weise wurde gezeigt [Gro 86a], dass der Elastizitätsmodul von Aerogelen und anderen porösen und nicht-porösen Quarzgläsern mit der Dichte hoch 3,7 skaliert:

$$(2.18) \quad E \propto \rho_a^\tau, \quad \tau \cong 3,7.$$

Bestätigt wurde der Exponent $\tau \cong 3,7$ in [Woi 89], wobei aber dort die Interpretation aus der Sicht der perkolierenden Systeme kritisiert wurde. Dennoch liefert eine Interpretation in der oben beschriebenen Weise mit $t \cong 1,6$ und $\tau \cong 3,7$ Exponenten, die in guter Übereinstimmung mit den Resultaten sowohl theoretischer Modelle [Fen 84 und Kan 84], als auch mit solchen experimenteller Untersuchungen an Modellsystemen stehen [Dep 85].

2.3.3 Akustische Eigenschaften

2.3.3.1 Schallausbreitung und elastische Konstanten

Die Ermittlung der *Schallgeschwindigkeit* kann durch direkte Messung der Laufzeit in einem Prüfling erfolgen. Dazu wird an beiden Enden der etwa 0,1 m langen Probe ein piezoelektrischer Wandler angebracht. Der eine Wandler wird durch ein elektrisches Wechselfeld zu Schwingungen angeregt und dient so als Sender von Schallwellen. Der entgegengesetzte Wandler wird umgekehrt betrieben und dient so als Empfänger. Aus der Verzögerung des Signals ergibt sich die Laufzeit und damit die Schallgeschwindigkeit.

Im akustischen Bereich bis zu Frequenzen im Megahertzbereich zeigen die Aerogelproben die für ein anorganisches Material tiefsten Schallgeschwindigkeiten auf. Die gemessenen Longitudinalwellen reichen von 120 m/s für eine Aerogeldichte von $\rho = 70 \text{ kg/m}^3$ bis zu 310 m/s für $\rho = 285 \text{ kg/m}^3$ [Gro 86b], steigen also mit der Dichte an.

Erstaunlich sind solch tiefe Geschwindigkeiten deshalb, wenn man bedenkt, dass Aerogel aus denselben Elementareinheiten wie Quarzglas besteht, wo die Schallgeschwindigkeit ~ 5000 m/s beträgt. Ursache für die extrem tiefen Schallgeschwindigkeiten ist der tiefe Elastizitätsmodul E , der in der Gegend von $10^6 - 10^7$ N/m² liegt. So ist der Zusammenhang zwischen der longitudinalen Schallgeschwindigkeit v_l und dem Elastizitätsmodul E in einem Medium, dessen Ausdehnung gross gegen die Wellenlänge ist, gegeben durch:

$$(2.19) \quad v_l = \sqrt{\frac{E \cdot (1 - \mu)}{\rho \cdot (1 + \mu) \cdot (1 - 2\mu)}} \quad .$$

Die Elastizitätskonstanten des Materials können entweder direkt gemessen werden oder aus den gemessenen Schallgeschwindigkeiten für longitudinale bzw. transversale Wellen berechnet werden [Gro 89]. So kann etwa das Poissonverhältnis μ berechnet werden mit:

$$(2.20) \quad \frac{v_l}{v_t} = \sqrt{\frac{2 \cdot (1 - \mu)}{1 - 2\mu}} \quad .$$

Die *Schallabsorption* im Aerogel ist bis hinauf in den MHz-Bereich gering. Qualitativ äussert sich dies darin, dass Aerogelstücke einen metallischen Klang aussenden, wenn sie fallen gelassen werden. Dies zeigt auch, dass nicht einmal die Luft im porösen Gerüst die Schallwellen wirkungsvoll dämpft.

Dem erwähnten Frequenzbereich entsprechen Wellenlängen oberhalb von $100 \mu\text{m}$. In diesem Längenbereich sind Aerogele sicher homogen und können als ideal-elastisches dispersionsfreies Kontinuum betrachtet werden. Es lässt sich deshalb überprüfen, ob die tiefen Schallgeschwindigkeiten nicht durch eine Luft-Gerüst-Wechselwirkung zustandekommen [Gro 86a und Gro 86b]. Ein solcher Effekt ist bekannt aus gewissen Schallabsorbern, wo die Struktur ebenfalls klein ist verglichen mit der Wellenlänge im Hörbereich und wo eine frequenzabhängige Schallgeschwindigkeit beobachtet wird. Im Gegensatz dazu zeigt Aerogel eine *dispersionsfreie Schallausbreitung*. Ausserdem ändert sich die Schallgeschwindigkeit durch Evakuieren der Probe kaum; eine eher geringe Änderung kann gut durch isotherme Kompression der Luft im Porenvolumen beschrieben werden [Gro 89]. Damit ist gezeigt, dass die Schallausbreitung im wesentlichen über das Gerüst und nicht über die Luft im porösen System erfolgt.

Bemerkenswert ist die Eigenschaft, dass die Schallgeschwindigkeit abnimmt, wenn eine Aerogelprobe nichtaxial belastet wird. Von gewöhnlichen Festkörpern erwartet man, dass sie beim Zusammendrücken steifer werden und so den Schall schneller leiten. Das weiche Verhalten von Aerogel muss auf die Verformung des Tertiärgerüsts zurückgeführt werden.

Durch Zusammendrücken werden die Winkel zwischen den Struktureinheiten und damit die rückstellenden Kräfte verringert.

Aus der geringen Dichte und der niedrigen Schallgeschwindigkeit ergibt sich auch eine tiefe akustische Impedanz:

$$(2.21) \quad Z = \rho \cdot v \quad .$$

Diese bewegt sich im Bereich zwischen $10^4 - 10^5 \text{ kg/m}^2\text{s}$. Die Verwendung einer Aerogelschicht als akustischer Koppler, etwa zwischen einem Schallgeber und der umgebenden Luft ist damit gegeben [Gro 86b].

2.3.3.2 Dynamisches Verhalten der Aerogelstruktur

Aufschluss über die Dynamik der mikroskopisch kleinen Struktureinheiten der Aerogele erhält man erst bei höheren Frequenzen. So liefern dort die unelastische Neutronenstreuung aber auch andere Spektroskopien Information über die Zustandsdichte.

Strukturelle Untersuchungen mit Hilfe der Kleinwinkelstreuung (SANS bzw. SAXS) [Sae 89 und Vac 88] haben gezeigt, dass das Rückgrat der Struktur durch Sekundärteilchen der mittleren Teilchengröße a gebildet wird. Diese Teilchen reihen sich auf zu einem fraktalen Netzwerk bis hin zu einer Korrelationslänge ξ , oberhalb der das Material homogen erscheint. Die Längenskala wird damit in drei Gebiete unterteilt, in denen man unterschiedliches Schwingungsregime erwartet. Namentlich sind dies mit ansteigender Frequenz: Phononen, Fraktonen und Teilchenmoden (Abb. 2.7).

Im Debye-Bereich, d.h. bei tiefen Frequenzen und Wellenlängen oberhalb ξ können die Schwingungen sich ausbreiten. Diese Moden sind schwach lokalisierte *akustische Phononen*, die mit Schallwellen identifiziert werden können. Bei erhöhter Frequenz kommt man nach Überschreiten einer Übergangsfrequenz ν_{c01} in das Gebiet mittlerer Längenskala $a < l < \xi$, wo die Struktur sich wie ein Volumenfraktal verhält. In diesem fraktalen Längenbereich werden lokalisierte Moden [Ale 82 und Ent 84] vorausgesagt, die *Fraktonen* genannt werden. Wenn die Frequenz noch weiter erhöht wird, erreicht man beim Überschreiten einer zweiten Übergangsfrequenz ν_{c02} Struktureinheiten der mittleren Teilchengröße a . Von dort an ist das System nicht mehr selbstähnlich und das Vibrationsspektrum wird dominiert durch *Bulk-* und *Oberflächenmoden* der Teilchen, aus denen sich die Struktur zusammensetzt.

Der Übergang von Phononen zu Fraktonen liegt etwa bei 1 GHz und wurde erstmals gezeigt durch *Brioullin-Streuung* [Cou 87]. Diese Technik erlaubte auch die Festlegung der Dispersionskurven für Fraktonen [Cou 88].

Beide Übergänge und die Existenz eines ausgeprägten Fraktonenbereichs zwischen 1 und 300 GHz wurden erstmals durch Niederfrequenz-Ramanspektroskopie gezeigt [Tsu 88].

Die Zustandsdichte im Bereich von ν_{co2} und darüber kann direkt gemessen werden durch inelastische Neutronenstreuung [Cod 89 und Rei 89].

Damit ergibt sich folgendes Bild der Zustandsdichte von Aerogel:

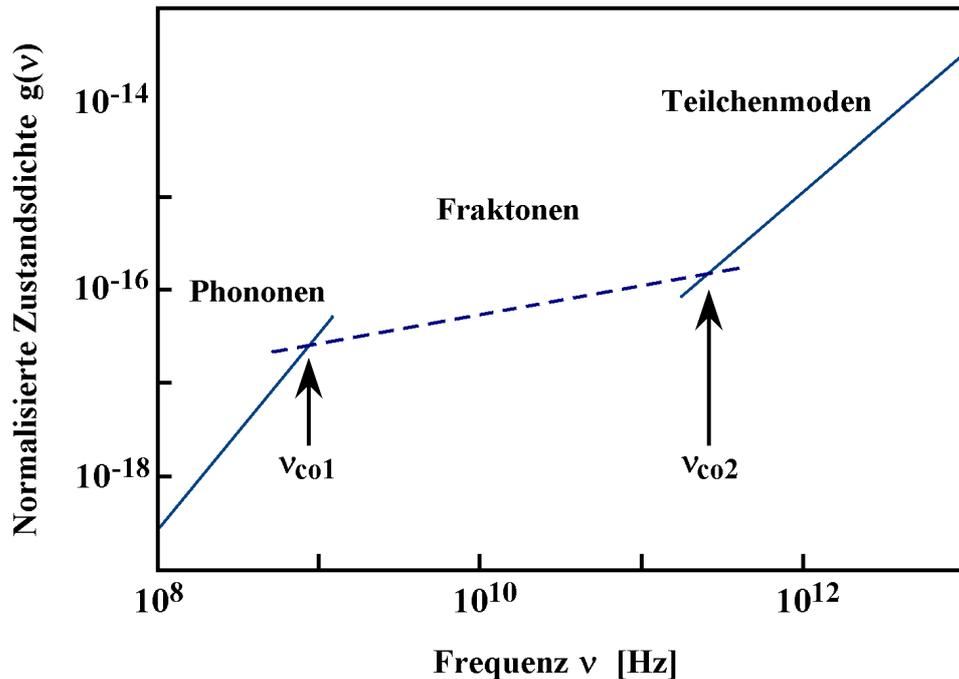


Abb. 2.7 Typischer Verlauf der Zustandsdichte von Aerogel nach [Cod 89].

Die Zustandsdichte liegt in Aerogelen um Größenordnungen über derjenigen von nicht porösem Quarzglas. Qualitativ verständlich ist dies, wenn man an die kleinen Struktureinheiten im Aerogel denkt, die leicht gegeneinander schwingen und rotieren können. Daraus ergibt sich eine bei tiefen Temperaturen drastisch erhöhte *Wärmekapazität* [Cal 87].

2.3.4 Wärmetransport

Für den Wärmetransport im Gerüst sind nicht lokalisierte Phononen unterhalb der Übergangsfrequenz ν_{co1} verantwortlich. Ausgehend von der Debye-Formel:

$$(2.22) \quad \lambda = \frac{1}{3} \cdot \rho \cdot c_v \cdot v \cdot \langle l \rangle \quad .$$

lässt sich die Festkörperleitung in Aerogel aus bekannten Eigenschaften von gewöhnlichem Quarzglas abschätzen. Die mittlere freie Weglänge der Phononen $\langle l \rangle$ liegt für Glas und Aerogel bei 1 nm herum. Die spezifischen Wärmekapazitäten c_v beider Materialien unterscheiden sich zwar drastisch im Bereich unterhalb 10 °K, nehmen jedoch bei erhöhten Temperaturen vergleichbare Werte an. Man erhält so aus (2.22) folgende Abschätzungsformel [Fri 89]:

$$(2.23) \quad \lambda_{AE} = \lambda_G \cdot \frac{\rho_{AE}}{\rho_G} \cdot \frac{v_{AE}}{v_G} .$$

Setzt man für die Schallgeschwindigkeiten $v_{AE} \cong 100$ m/s bzw. $v_G \cong 5000$ m/s, für die Dichten $\rho_{AE} \cong 100$ kg/m³ bzw. $\rho_G \cong 2200$ kg/m³ und weiter für die Wärmeleitfähigkeit von Quarz $\lambda_G \cong 1,3$ W/mK, so erhält man für die Wärmeleitfähigkeit des Aerogelgerüsts $\lambda_{AE} \cong 10^{-3}$ W/mK. Die Gültigkeit des Phonondiffusionsmodelles bei Raumtemperatur wurde erfolgreich getestet über einen grossen Bereich der Dichte in [Nil 89].

Der Beitrag der Wärmeleitung entlang des feinen Gel-Gerüsts zeigt sich also gegenüber nichtporösem Quarz drastisch reduziert und nimmt mit abnehmender Dichte (d.h. zunehmender Porosität) ab. In nichtevakuierten Systemen kommt die *Leitung über das Poren-gas* hinzu. Schon bei Umgebungsdruck erscheint jedoch die Leitung über das Poren-gas reduziert, da die mittlere freie Weglänge des Füllgases schon hier im Bereich des Porendurchmessers liegt. Zur Beseitigung der restlichen Gasleitung reicht ein Absenken des Druckes auf ca. 50 mbar aus.

Schliesslich liefert die *Strahlung* einen Beitrag. In Fenstersystemen ist die Wärmestrahlung von Körpern auf Umgebungstemperaturen massgebend. Diese liegt zwischen 5 und 20 μ m. Quarz-Aerogele absorbieren IR-Strahlung oberhalb 5 μ m recht gut und halten deshalb Wärmestrahlung bei Umgebungstemperatur wirkungsvoll zurück. Zwischen 3 und 5 μ m besitzt Aerogel jedoch ein "Strahlungsloch". Bei steigenden Temperaturen, die jedoch jenseits des Anwendungsbereiches von Fenstern liegen, verschlechtern sich die isolierenden Eigenschaften deutlich. Während der Wärmetransport durch Leitung nur schwach temperaturabhängig ist, folgt der Wärmeverlust durch Strahlung in erster Näherung einem T³-Gesetz.

Insgesamt hat man es hier mit dem Wärmetransport eines dispersen Systems zu tun, bei dem der Leitungs- und der Strahlungsanteil gekoppelt sind: In jeder Teilschicht wird ein gewisser Anteil der *Strahlung* absorbiert und entsprechend der lokalen Temperatur reemittiert. Dabei kommuniziert jede Schicht je nach freier Weglänge der Photonen mehr oder weniger stark sowohl mit den Rändern als auch mit den anderen Schichten des Systems. Gleichzeitig wird entsprechend dem lokalen Temperaturgradienten ein Teil der Wärme durch *Leitung* von Schicht zu Schicht transportiert. Leitungs- und Strahlungsanteil hängen somit an

jeder Stelle voneinander ab. Man spricht deshalb von Kopplung der Wärmetransportmechanismen.

Im Gleichgewicht resultiert eine nichtlineare Temperaturverteilung und eine gewisse Anhebung des totalen Wärmetransportes gegenüber einem ungekoppelten System. Dieser Gleichgewichtszustand wird durch eine komplizierte Integrodifferentialgleichung beschrieben, die man erhält, wenn für jede Teilschicht eine Energiebilanz aufgestellt wird. Für ein nichtgraues Medium wie Aerogel, wo also die optische Dicke von der Wellenlänge abhängt, ist diese Gleichung nur numerisch und mit grossem Aufwand lösbar. Der Wärmetransport kann jedoch mit vereinfachenden Modellen behandelt werden, die das Verhalten einer Aerogelschicht unter verschiedenen Bedingungen und Anordnungen gut wiedergibt. Solche Modelle können etwa dazu dienen, den Einsatz von Aerogel in Fenstersystemen zu optimieren.

2.3.5 Optische Eigenschaften

2.3.5.1 Zur Transparenz und Streuung

Die charakteristische Länge der Mikrostruktur von Aerogel ist viel kleiner als die Wellenlänge des Lichtes. Aus diesem Grund ist Aerogel *transparent*. Schon mit blossen Auge ist jedoch erkennbar, dass Aerogel einen gewissen Anteil des Lichtes *streut*: Gegen einen dunklen Hintergrund erscheint Aerogel milchig blau. Weisse Flächen erscheinen in der Durchsicht blass gelblich, weil infolge Streuung ein gewisser Anteil des blauen Lichtes aus dem Spektrum fehlt. Aerogel verhält sich also in dieser Hinsicht, wie man es von Teilchen, die kleiner als die Wellenlänge des Lichtes sind, erwartet: Es zeigt die typischen Eigenschaften eines *Rayleigh-Streuers*, wo die gestreute Intensität einem λ^{-4} -Gesetz folgt.

Das opaleszierende Erscheinungsbild (milchig weisse Färbung, bekannt aus Opalen, deren sphärische Grundeinheiten nicht uniforme Grösse besitzen) deutet zusätzlich auf langreichweitige Dichtefluktuationen hin [Nas 83]. Mit solchen Dichtefluktuationen korrelieren Variationen des *Brechindex*, wodurch Streueffekte erst möglich werden. Für Aerogel ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Dichte und Brechindex:

2.3.5.2 Brechindex

Der Gesamtbrechindex n eines zusammengesetzten Materials ergibt sich aus der Bedingung, dass die Gesamtpolarisation der Summe der Polarisationen seiner Bestandteile entspricht:

$$(2.24) \quad \frac{(n^2 - 1)}{(n^2 + 2)} = \sum_i f_i \cdot \frac{(n_i^2 - 1)}{(n_i^2 + 2)} \quad , \quad \sum_i f_i = 1 \quad .$$

Mit f_i bzw. n_i sind die Volumenanteile bzw. Brechindizes der Einzelmaterialien gemeint. Der Gültigkeitsbereich von (2.24) wird in [Hun 84] diskutiert. Nimmt man ein zwei-komponentiges System aus Luft und Quarzteilchen und setzt für den Brechindex der Luft $n_L \cong 1$, so erhält man aus (2.24) näherungsweise für den Brechindex n des Aerogels:

$$(2.25) \quad (n - 1) = f_{\text{Quarz}} \cdot (n_{\text{Quarz}} - 1) \quad .$$

Der Quarzanteil f_{Quarz} lässt sich durch die Dichte ρ des Aerogels ausdrücken mit Hilfe des einfach zu findenden Ausdrucks:

$$(2.26) \quad \frac{\rho}{\rho_{\text{Quarz}}} = f_{\text{Quarz}} + f_{\text{Luft}} \cdot \frac{\rho_{\text{Luft}}}{\rho_{\text{Quarz}}} \cong f_{\text{Quarz}} \quad .$$

Wegen $\rho_{\text{Luft}} \ll \rho_{\text{Quarz}}$ folgt $f_{\text{Quarz}} \cong \rho / \rho_{\text{Quarz}}$ und für den Brechindex schliesslich:

$$(2.27) \quad (n - 1) = \frac{\rho}{\rho_{\text{Quarz}}} \cdot (n_{\text{Quarz}} - 1) \quad .$$

Setzt man für $\rho_{\text{Quarz}} \cong 2,19 \text{ g/cm}^3$ und für $n_{\text{Quarz}} \cong 1,45$, so erhält man den Standardausdruck für den Brechindex n von Aerogel:

$$(2.28) \quad (n - 1) = 0,21 \cdot \rho \quad , \quad [\rho] = \text{g/cm}^3 \quad .$$

Eine genauere Auswertung von (2.24) mit Berücksichtigung von Hydroxylgruppen liefert denselben Faktor 0,21 [Poe 86]. Diese Beziehung wurde dort und beispielsweise auch in [Ras 89] experimentell verifiziert.

2.3.5.3 Lichtstreuung und Strukturdaten aus Lichtstreuexperimenten

In einem ersten Ansatz können die Streudaten interpretiert werden als Streuung an kleinen ($a \ll \lambda$), isolierten sphärischen Rayleigh Streuzentren. Unpolarisiertes Licht zeigt dann die bekannte zu $(1 + \cos^2\Theta)$ proportionale Phasenfunktion. Integration über eine grosse

Kugeloberfläche liefert die totale gestreute Energie und damit den Extinktionskoeffizienten [VdH 81]:

$$(2.29) \quad \sigma = N \cdot \pi \cdot a^2 \cdot \frac{8}{3} \cdot \left[\frac{2\pi \cdot a}{\lambda} \right]^4 \cdot n_1^4 \cdot \left[\frac{(n_2/n_1)^2 - 1}{(n_2/n_1)^2 + 2} \right]^2, \quad [\text{m}^{-1}]$$

Darin sind N die Anzahl Teilchen pro Volumen, a der Teilchenradius, λ die Vakuumwellenlänge, n_2 der Brechindex der Quarzkügelchen und n_1 der Brechindex des streuenden Mediums, wie es sich mit (2.28) ergibt. Die Teilchenzahldichte N lässt sich unter Annahme kugelförmiger Teilchen leicht durch die scheinbare Dichte ρ_a und die wahre Dichte ρ_t (und damit durch die Porosität) ausdrücken. Durch Messung der (spektralen) normal-normalen Transmission T einer Aerogelschicht der Dicke d , kann so unter Vernachlässigung von Mehrfachstreuung, die die Verteilung des gestreuten Lichtes ändert, der Teilchendurchmesser $2a$ abgeschätzt werden:

$$(2.30) \quad T \cong \tau = e^{-\sigma \cdot d}$$

Auf diese Weise kommen zwei Autoren [Rub 83 und Bou 89] auf einen Teilchendurchmesser von etwa 12 nm.

Einen etwas erweiterten Ansatz findet man in [Hun 84]. Dort werden die Streumessungen winkelabhängig und für beide Polarisationsrichtungen durchgeführt. Zur Beschreibung der Dichtefluktuationen wird in den Streugleichungen eine *Korrelationsfunktion* bestehend aus zwei exponentiellen Anteilen eingeführt. Die beiden Exponentialfunktionen enthalten je eine Korrelationslänge für den kurz- bzw. den langreichweitigen Bereich, die durch einen Fit der Messkurven extrahiert werden können. Es zeigt sich auf diese Weise, dass die Lichtstreuung in Aerogel so interpretiert werden kann, als hätte sie zwei Ursachen. Danach kommt die Streuung zum einen von der kurzreichweitigen Struktur aus fein vernetzten Partikel, zum andern von schwachen Dichtefluktuationen der mikroporösen Struktur über Distanzen, die signifikant grösser sind als die Porengrösse. Die Autoren nennen für die beiden Korrelationslängen 5 nm bzw. 200 nm.

Einen ähnlichen Ansatz findet man auch in [Bec 89]. Auch hier wird eine exponentielle Korrelationsfunktion eingeführt zur Beschreibung der Dichtefluktuationen. Damit wird die Streuintensität für ein zweiphasiges Medium hergeleitet. Für verschiedene Geometrien wird die winkelabhängige Streuung mit einem He-Ne-Laser (633 nm) als Lichtquelle gemessen. Aus dem Vergleich der Messungen mit der berechneten Streuintensität ergibt sich eine Abnahme der Korrelationslänge mit zunehmender Dichte.

Dies wird damit erklärt, dass man bei dichten Proben von einer höher konzentrierten TMOS-Lösung ausgeht. Es ergibt sich dann eine erhöhte Anzahl von Keimen zur Bildung von Kernen und damit auch eine erhöhte Anzahl von sekundären Quarzteilchen, die sich zu einem Clusternetz aufreihen. Das führt schliesslich zu Dichtefluktuationen, die zwar häufiger auftreten, jedoch eine geringere räumliche Ausdehnung besitzen. Neben der Ausgangskonzentration beeinflusst die gesamte Steuerung des Sol-Gel-Prozesses, also auch die Katalysatoren und der pH-Wert, die Strukturbildung und damit die Transparenz.

Die gestreute Intensität ist in Vorwärtsrichtung gegenüber der Rückstreuung um 20-40% erhöht, was auf Rayleigh-Gans Streuung hinweist. Die so bestimmten Korrelationslängen liegen zwischen 13,5 und 23 nm. Durch Streumessungen mit sichtbarem Licht können Strukturen bis hinunter zu einer Grössenordnung $\lambda/60$ untersucht werden. Für Strukturuntersuchungen unterhalb etwa 10 nm sind daher andere Verfahren (SAXS bzw. SANS) heranzuziehen [Bec 89].

2.4 Anwendungen von Aerogel

2.4.1 Cerenkov-Detektoren

Wesentlich vorangetrieben wurde die Entwicklung von Aerogel durch den Bedarf der Hochenergiephysiker an Materialien mit tiefem Brechindex zum Bau von Cerenkov-Detektoren. Diese Detektoren zum Nachweis und zur Geschwindigkeitsanalyse energiereicher geladener Teilchen stellten zunächst die erste und einzige praktische Anwendung von Aerogelen dar.

Bewegt sich ein geladenes Teilchen durch ein Medium mit einer Geschwindigkeit v , die höher liegt als die Phasengeschwindigkeit $c = c_0/n$ des Lichtes in diesem Medium, so erzeugt es eine kegelförmige elektromagnetische Welle. Der Winkel zwischen der Ausbreitungsrichtung der Wellenfront und der Flugrichtung des Teilchens ist gegeben durch:

$$(2.31) \quad \cos \alpha = \frac{c_0/n}{v} = (\beta \cdot n)^{-1} \quad , \quad \beta = \frac{v}{c_0} \quad .$$

Aus dem Öffnungswinkel des Kegels lässt sich die Teilchengeschwindigkeit bestimmen. Mit der Wahl des Brechindex wählt man die Schwelle $\beta_0 = 1/n$, oberhalb der der Effekt überhaupt eintritt, aber auch den Bereich, in dem der Detektor gutes Geschwindigkeitsauflösungsvermögen besitzt [Ras 89].

Der Brechindex von Aerogel liegt nun gerade in dem Bereich, der weder von Gasen noch von Flüssigkeiten abgedeckt werden kann ($n = 1,002 - 1,3$). Aerogele haben ausreichend gute optische Eigenschaften und können gemäss (2.28) mit Brechindizes zwischen 1,007 und 1,25 hergestellt werden [Poe 86], wobei Brechindizes oberhalb 1,05 durch Sinterung des Ausgangsmaterials erzielt werden [Ras 89].

2.4.2 Aerogel als akustisches Material

2.4.2.1 Nützliche Anwendungen

Die in Abschnitt 2.3.3.1 beschriebenen Eigenschaften lassen an folgende Anwendungen von Aerogel als akustischem Material denken [Gro 86b]:

- Wegen seiner tiefen Schallgeschwindigkeit und seiner Homogenität für Wellen im Schallbereich könnte Aerogel als dispersionsfreie *akustische Verzögerungsleitung* eingesetzt werden. Ein 0,1 m langes Aerogelstück ergäbe eine Zeitverzögerung von ca. 1 ms. Solche Distanzen können leicht überbrückt werden, da die Schallabsorption in Aerogel selbst bis hinauf zu Frequenzen von 1 MHz sehr gering ist.
- Ein System bestehend aus einer Aerogelschicht, die belastet wird mit einer Gewichtplatte, hätte wegen dem tiefen E-Modul des Aerogels eine tiefe Resonanzfrequenz ν_{Res} . Für Frequenzen oberhalb der Resonanzfrequenz nimmt der transmittierte Schalldruck mit einem ν^2 -Gesetz ab. Damit ergäbe sich in diesem Bereich eine *hitzebeständige Schallisolation*.
- Die niedrige akustische Impedanz liegt zwischen den weit divergierenden Impedanzen von piezoelektrischen Wandlern und der umgebenden Luft. Bringt man eine Aerogelschicht mit einer Dicke, die dem ungeraden Vielfachen von $\lambda/4$ entspricht, als Puffer auf einen solchen Wandler, so verschwindet die Reflexion, wenn die Impedanz folgendermassen gewählt wird:

$$(2.32) \quad Z_{\text{Aerogel}} = \sqrt{Z_{\text{Piezo}} \cdot Z_{\text{Luft}}} \quad .$$

Eine solche *nichtreflektierende $\lambda/4$ -Schicht* würde die Schallemission eines solchen Wandlers beträchtlich erhöhen.

2.4.2.2 Schalldämmung bei Aerogelfenstern

In einem Aerogelfenster, dessen Scheibenzwischenraum ganz mit Aerogel angefüllt ist, wirkt sich die Eigenschaft von Aerogel, als akustischer Koppler zu wirken, bezüglich der Schallabschwächung nachteilig aus.

Gegenüber einer gewöhnlichen Zweischeibenverglasung mit Luftzwischenraum ergibt sich eine Erhöhung der Trommelfrequenz, bei der also die beiden Scheiben gegenphasig in Resonanz schwingen, wobei das Medium dazwischen als Feder wirkt.

Hingegen verschieben sich die Frequenzen der stehenden Schwingungsmoden des Scheibenzwischenraumes bei Aerogelfenstern zu tieferen Frequenzen [Gro 86b].

2.4.3 Aerogel in Fenstersystemen

2.4.3.1 Aerogelfenster aus der Sicht der Fensterentwicklung

Im Bestreben, Fenster herzustellen mit guten wärmedämmenden Eigenschaften bei gleichzeitig hoher optischer Transparenz, erscheint der Einsatz von Aerogel als folgerichtiger Schritt in der Entwicklung von Fenstersystemen:

Eine einfache Glasscheibe erhält ihre isolierende Wirkung fast ausschliesslich durch die Wärmeübergänge der beiden Grenzschichten, bestehend aus konvektierenden Luftschichten. Werden weitere Glasscheiben hinzugefügt, so bewirken die eingesperrten Luftschichten eine deutliche Absenkung des Wärmeverlustes. Die Konvektion und der Strahlungsaustausch zwischen den Scheibenoberflächen beschränkt jedoch die Wirkung.

Immerhin lässt sich eine Verbesserung durch den Einsatz von schweren Gasen (Argon) und von selektiven Beschichtungen, die den Strahlungsverlust mindern, erzielen. Jede weitere Glasschicht oder selektive Beschichtung reduziert jedoch sowohl die solare als auch die rein visuelle Transmission.

Eine horizontale bzw. vertikale Unterteilung der Scheibenzwischenräume stört die Durchsicht der Fenster. Dasselbe lässt sich sagen für konventionelle isolierende Materialien, die alle opak erscheinen, selbst wenn sie aus transparenten Materialien gefertigt sind. *Aerogel* hingegen erscheint transparent, da es aus Struktureinheiten besteht, die kleiner als die Wellenlänge des Lichtes sind. Auf Grund seiner mikroporösen Struktur und der eingeschränkten Transparenz im IR erscheinen die Wärmetransportmechanismen nochmals deutlich reduziert. Eine weitere Reduktion ist gar noch möglich, wenn das Porengas evakuiert wird. Aerogel ist in der Lage, den Luftdruck, der auf den Scheiben lastet, zu tragen.

Für das Verständnis der hervorragenden Isolationswirkung von Aerogel ist Kenntnis der Wärmetransportmechanismen notwendig. Diese wurden im Abschnitt 2.3.4 beschrieben. Eine quantitative Behandlung mit Hilfe eines halbempirischen Modelles folgt in 5.1.2. Damit lassen sich Fragen der Anwendung in Fenstersystemen beantworten und Massnahmen zur Verbesserung der isolierenden Eigenschaften ableiten.

Hier soll deshalb nur noch erwähnt werden, dass wegen der endlichen optischen Dicke von Aerogel im IR-Bereich auch weiter entfernte Schichten über die Strahlung Energie austauschen können. Die Beschreibung des Wärmetransportes im Aerogel ist daher ein nicht lokales Phänomen, indem neben der endlichen freien Weglänge der Photonen auch die Dicke der Probe und die Randemissivitäten der angrenzenden Schichten eingehen. Daneben sind auch die Leitungsbeiträge durch das Gerüst und über das Porengas zu berücksichtigen.

2.4.3.2 Randbedingungen für den Aerogeleinsatz in grossem Masstab

Der Einsatz von Aerogelfenstern in industriellem Masstab ist erst absehbar, wenn die billige Produktion grosser Mengen an Aerogelkacheln gelingt, die bezüglich ihrer visuellen Transparenz und ihrer mechanischen Eigenschaften optimiert worden sind. Dies kann auch als Hauptziel der heutigen Aerogelforschung bezeichnet werden.

Die heutige Produktion im Labormasstab oder in Pilotanlagen ist natürlich sehr teuer. Mit einer industriellen Fertigung liessen sich die Kosten massiv senken. In [Hen 90] findet man Angaben zu einer Kostenabschätzung für kommerziell hergestelltes Aerogel. Darin kommt man zum Schluss, dass sich bei einer Serienfabrikation von Aerogelkacheln der Preis auf etwa 30 Fr./m² senken lässt, wobei die eine Hälfte Materialkosten, die andere Hälfte Investitionen und Personalkosten sind. Dabei sind Kosten von Land, Gebäude und Administration nicht eingeschlossen. Bevor jedoch eine industrielle Produktion ins Auge gefasst werden kann, ist noch einige Forschungsarbeit notwendig:

Von der Materialseite her ist zu sagen, dass vor allem die optische Qualität den heutigen Anforderungen an die visuelle Transparenz nicht zu genügen vermag. Verbesserungen scheinen möglich, da die störenden Streueffekte eng mit der Struktur und damit mit dem Herstellungsprozess verknüpft sind. Die bisher verfügbare Qualität ist jedoch für den Einsatz in Oberlichtern und ähnlichen Anwendungen, wo es nur um die Ausleuchtung von Räumen mit Tageslicht geht, ausreichend. Für solche Anwendungen sind auch Aerogele in Granulatform einsetzbar, deren Produktion vom Herstellungsprozess und von den Ausgangsmaterialien her billiger ist.

Quarzaerogel besitzt noch eine geringe mechanische Stabilität. Es kann zwar reine Druckbelastungen bis 3 bar schadlos überstehen, reagiert aber spröde auf Biegung und auf

Scherbelastungen. Um Transportschäden zu vermeiden, sollte Aerogel deshalb unmittelbar nach der Herstellung in ein stabiles Fenstersystem eingeschlossen werden. Wegen der Kapillarwirkung in den Gussformen erscheinen Aerogelkacheln an den Rändern leicht hochgezogen. Solche Unebenheiten können zu Scherbelastungen führen, selbst wenn auf die Scheiben des Fenstersystems bloss Druck ausgeübt wird. Dies kann vermieden werden, wenn die Ränder des Aerogels vor dem Einbau abgeschnitten werden.

Will man das isolierende Potential von Aerogel voll ausschöpfen, so müssen die Fenstersysteme evakuiert werden. Bei Aerogel in Kachelform genügt ein Absenken des Druckes auf ca. 50 mbar. Zur Aufrechterhaltung solcher Vakua über Jahrzehnte reichen organische Randverbundssysteme aus, die jedoch auf die Anforderungen in Fenstersystemen hin weiterentwickelt werden müssten. Bei Fenstern mit Granulatfüllung erscheint jedoch schon bei 1/10 mbar ein beträchtlicher Anstieg des Wärmeverlustes. Solche Fenster müssten mit Metall- oder Glasrandverbundsystemen versehen werden, die heute technisch noch nicht verfügbar sind.

Immerhin sind unevakuierte Isoliergläser mit Glas-in-Glas verschweissten Randverbunden schon seit Jahrzehnten auf dem Markt (unter dem Markennamen GADO und SEDO) [Gna 86]. Labormässige Versuche, den Rand von Glasscheiben mit einem Laserstrahl zu dichten, wurden ebenfalls schon durchgeführt [Jor 84]. Bei diesen Versuchen wurden Scheiben mit IR-reflektierenden Schichten und kugelförmigen Distanzhaltern verwendet.

Bei der Evakuierung von Aerogelfenstersystemen tritt eine weitere Schwierigkeit auf, den erforderlichen Gasdruck aufrechtzuerhalten: Wegen seiner riesigen spezifischen Oberfläche adsorbiert Aerogel erhebliche Mengen von Gasen. Ein Grossteil ist wegen seiner Polarität Wasser. Um ein Ausgasen zu vermeiden, sollte möglichst schon im Anschluss an den eigentlichen Herstellungsprozess ein Trocknungsvorgang im Sinne einer Nachbehandlung anschliessen, bevor das Aerogel luftdicht in das Fenstersystem eingeschlossen wird.

Will man die Probleme, die sich beim Evakuieren ergeben (Dichtheit des Randverbundes und Ausgasen des Aerogels) umgehen, so ist auch denkbar, den Aerogelblock mit ein oder zwei Luftspalten anzuordnen, um so auf eine etwas anspruchslosere Art eine weitere Reduktion des k-Wertes zu erhalten.

2.4.4 Transparente Wärmedämmung

Aerogel erweist sich wegen seiner Transparenz und seinen isolierenden Eigenschaften als geeignetes Material zur Herstellung einer transparenten Wärmedämmung (TWD). Dabei wird eine Schicht aus dem lichtdurchlässigen Wärmedämmmaterial vor einer Hausfassade angebracht (Abb. 2.8). Diffuses oder direktes Licht der Sonnenstrahlung kann mehr oder weniger ungehindert durchdringen und wird an der als Absorber ausgebildeten Wandoberfläche absorbiert. Von der so gewonnenen Wärmeenergie fließt je nach Verhältnis der Wärmeleitwerte von transparenter Isolation und Hauswand ein entsprechender Anteil nach innen und dient so zum Ausgleich der Wärmeverluste oder gar als Beitrag zur Gebäudeheizung.

Die momentanen Temperaturverhältnisse und Energieflüsse einer Wand lassen sich wegen der thermischen Trägheit und den kurzfristigen Temperaturschwankungen nur numerisch beschreiben. Unter Heranziehung von Mittelwerten (z.B. Tages- oder Monatsmittelwerte) können die Verhältnisse mit einfachen stationären Gleichungen beschrieben werden. Dabei werden also die Wärmespeichereffekte vernachlässigt, da sich diese nur in kürzeren Zeitabschnitten auswirken können [Goe 84]. Mit den in den folgenden Gleichungen auftretenden Größen sind also jeweils die Mittelwerte über einen gewissen Zeitraum gemeint.

Der Anteil der auftreffenden Strahlung I , der an der Absorberoberfläche absorbiert wird, ist gegeben durch den g -Wert der TWD:

$$(2.33) \quad g_{\text{TWD}} = (\tau \cdot \alpha)_{\text{eff}} + q_i \quad .$$

Darin ist τ das Transmissionsvermögen der TWD, α das Absorptionsvermögen des Kollektors und q_i die sekundäre Wärmeabgabe, die sich durch Erhöhung der Materialtemperatur infolge solarer Absorption in der TWD ergibt. Der Anteil, der davon nach innen fließt, ist gegeben durch $k_W/(k_W+k_I)$, wenn k_W die Wärmeleitzahl der Hauswand samt innerem Wärmeübergang und k_I die Wärmeleitzahl der TWD samt äusserem Wärmeübergang ist. Der Anteil der Solarstrahlung, der danach insgesamt ins Hausinnere dringt, kann sinnvollerweise als Strahlungswirkungsgrad der TWD definiert werden:

$$(2.34) \quad \eta = \frac{g_{\text{TWD}}}{1 + \frac{k_I}{k_W}} \quad .$$

Gute Strahlungsumwandlungsgrade erhält man danach bei guter Transparenz und niedrigem k -Wert der Wärmedämmung, sowie hohem k -Wert der Wand.

Der Energieverlust Q der ganzen Wand reduziert sich infolge der Einstrahlung um den durch (2.34) gegebenen Anteil $\eta \cdot I$:

mittlere solare Strahlungsleistung I auf, so erhält man gemäss (2.35) Geraden mit der negativen Steigung $-\eta$. Die thermischen Verluste verschwinden danach für:

$$(2.36) \quad k_I \cdot \Delta T = (\tau \cdot \alpha)_{\text{eff}} \cdot I \quad , \quad \text{mit } g_{\text{TWD}} \equiv (\tau \cdot \alpha)_{\text{eff}} \quad .$$

Das gesamte Temperaturgefälle liegt dann also zwischen Absorberwand und Aussenraum. Setzt man $\alpha \equiv 1$ und $k_I \equiv \Lambda_{\text{TWD}}$, so erhält man eine Abschätzung der mittleren Einstrahlung pro Grad Temperaturdifferenz, die notwendig ist, um den Innenraum des Hauses von der Umgebung abzukoppeln:

$$(2.37) \quad \frac{I}{\Delta T} \cong \frac{\Lambda_{\text{TWD}}}{\tau} \quad .$$

Dieser Wert liegt bei Aerogel tiefer als bei anderen transparenten Isolationen (Tab. 2.1):

	Druck	typ. Dicke [cm]	Λ_{TWD} [W/m ² K]	τ [1]	$\Lambda_{\text{TWD}}/\tau$ [W/m ² K]
Aerogel	ND, Luft	1,5	1	0,6	1,6
	evakuiert	1,5	0,5	0,6	0,8
Aerogel granular	ND, Luft	1,5	1	0,5	2
	evakuiert	1,5	0,5	0,5	1
Aerel Kapillarstruktur	ND	10	0,9	0,6	1,5
Fiberschichten D ~20 μm	ND	5	1,2	0,4	3
Makro-Glasblasen 3 - 5 mm	ND	2	2	0,5	4

Tab. 2.1 Vergleich verschiedener transparenter Isolationssysteme nach [Fri 89a].

Es kann auch theoretisch gezeigt werden, dass von den verschiedenen Möglichkeiten, ein Rohmaterial in einer TWD anzuordnen, eine homogene Verteilung des Materials minimale thermische Leitfähigkeit ergibt [Pfl 87]. D.h. ausgehend von einer typischen Aufteilung in 5% Rohmaterial und 95% Luft erhält man mit Aerogel gegenüber Kapillar-, Wabenstrukturen etc. die tiefste Wärmeleitfähigkeit.

Abschliessend sei noch eine Bemerkung zu dieser Abschätzung beigefügt. In der Abb. 2.8 enthält die Innenseite der TWD eine IR-opaque Schicht (Glasscheibe). Dadurch wurde die

Aufteilung in Einzelkomponenten in Serie möglich. Nach Möglichkeit sollte eine solche innere Abdeckung (Schutzschicht) weggelassen werden, da sie sich durch die konvektierende Luft aufheizt (selbst bei Verwendung eines selektiven Absorbers mit tiefer IR-Emission). Eine solche Schicht strahlt nämlich ihre Wärme in die TWD ab, was dort zu einer erhöhten Kopplung von Strahlung und Leitung führt und damit den Wärmeverlust des Systems erhöht [Pfl 88]. Unsere Abschätzung liefert also in diesem Sinn im Fall, wo diese Schutzschicht weggelassen werden kann, eher etwas zu pessimistische Werte. Die Abschätzung rechtfertigt sich jedoch durch ihre Einfachheit bei gleichzeitig guter Aussagekraft für den Vergleich verschiedener TWD'en.

3 KONVENTIONELLE FENSTER UND IHRE WEITERENTWICKLUNG

3.1 Kenngrößen zur energetischen Bewertung von Fenstern

Betrachtet man die Energiebilanz an einem Fenster, so hat man im wesentlichen zwei Energieströme zu berücksichtigen. Zunächst führt das Temperaturgefälle zu einem Verlust durch Wärmetransport. Bei transparenten Bauteilen kommt nun zusätzlich ein Strahlungsgewinn hinzu. Abbildung 3.1 illustriert diesen Sachverhalt:

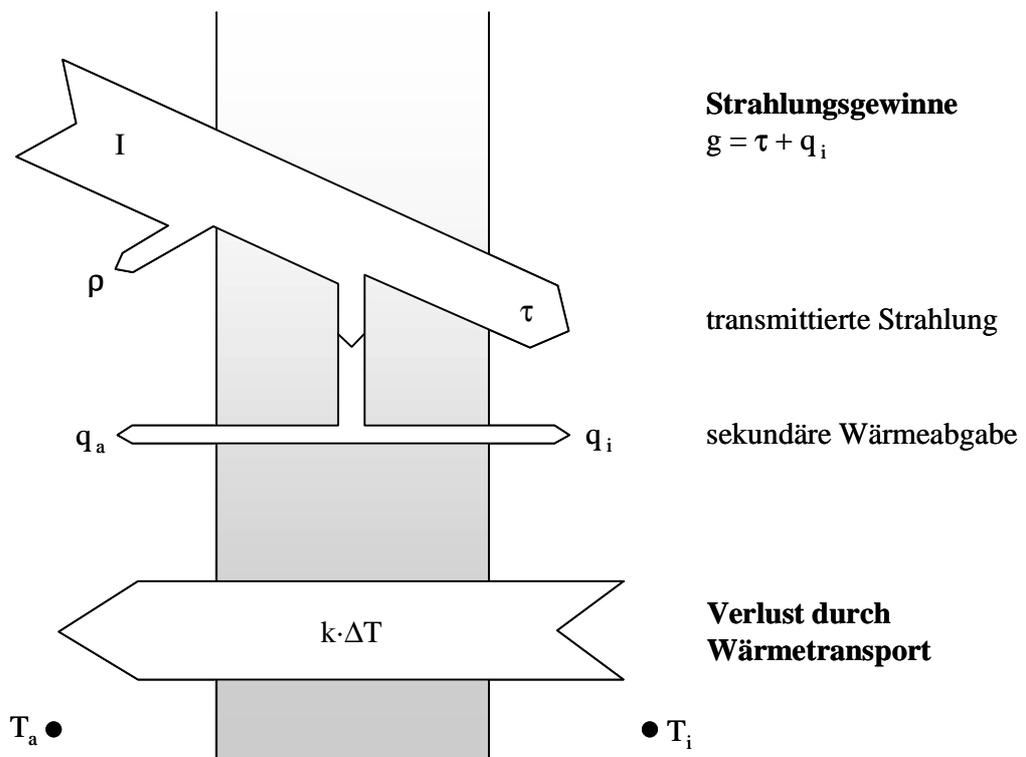


Abb. 3.1 Energiebilanz an einem Fenster. Neben dem Verlust durch Wärmetransport $j_T = k \cdot \Delta T$ muss bei einem transparenten Bauteil auch der Strahlungsgewinn der Globalstrahlung $j_S = g \cdot I$ berücksichtigt werden.

Es zeigt sich, dass die Energiebilanz an einem Fenster durch zwei Kenngrößen beschrieben werden kann: Der *Wärmedurchgangskoeffizient* k und der *Gesamtenergiedurchlassgrad* g vermitteln bei gegebenem Temperaturgefälle $\Delta T = T_i - T_a$ und bei gegebener Einstrahlung I als einfache Proportionalitätskonstanten die beiden Energieströme. Eine genaue Definition dieser Kenngrößen erfolgt in diesem Abschnitt:

3.1.1 Der Wärmedurchgangskoeffizient k

Liegt zwischen Innen- und Aussenraum ein Temperaturgefälle $\Delta T = T_i - T_a$ über dem Fenstersystem, so fliesst ein Wärmestrom j_T . Der *Wärmedurchgangskoeffizient* k oder "k-Wert" definiert sich als Proportionalitätskonstante zwischen dem Wärmefluss und dem Temperaturgefälle:

$$(3.1) \quad j_T = k \cdot \Delta T \quad .$$

Dabei sind in k neben dem Wärmedurchgangswiderstand $1/\Lambda$ des Bauteiles selbst auch die beiden Wärmeübergangswiderstände $1/\alpha_i$ und $1/\alpha_a$ an den Grenzflächen miteinbezogen:

$$(3.2) \quad k = \left(\frac{1}{\alpha_a} + \frac{1}{\Lambda} + \frac{1}{\alpha_i} \right)^{-1} \quad .$$

Nach der DIN-Norm 4108 werden die Wärmeübergangszahlen festgelegt mit $\alpha_i = 8 \text{ W/m}^2\text{K}$ und $\alpha_a = 23 \text{ W/m}^2\text{K}$. Die innere Wärmeübergangszahl ergibt sich bei Annahme freier Konvektion, die äussere Wärmeübergangszahl aus der Berücksichtigung mittlerer Windgeschwindigkeiten ($v \cong 2 \text{ m/s}$). Natürlich hängen diese Wärmeübergangszahlen auch von den einzelnen Temperaturniveaus ab, doch bewegt sich diese Abhängigkeit in einem so geringen Rahmen, dass die normierten Werte als gute Richtwerte gelten können. Als besonders praktisch erweist sich diese Definition deshalb im Falle, wo auf Grund des gewählten Messverfahrens bloss die Wärmeübergangszahl Λ ohne Wärmeübergänge verfügbar ist. Der k-Wert kann dann einfach mit (3.2) berechnet werden. Bei einem Produktvergleich sollte jedoch immer angegeben werden, ob der angegebene k-Wert auf den festen Wärmeübergangszahlen beruht, oder ob die Wärmeübergänge durch ein anwendungsnahes Verfahren bestimmt wurden.

3.1.2 Der Gesamtenergiedurchlassgrad g

Bei transparenten Bauteilen muss in der Energiebilanz auch ein Strahlungsgewinn berücksichtigt werden. Dieser setzt sich selbst aus zwei Anteilen zusammen: Zunächst wird bei gegebener Einstrahlung I ein Anteil direkt ins Rauminnere transmittiert, der durch den *Strahlungstransmissionsgrad* τ gegeben ist. Zusätzlich kommt ein Energiegewinn dadurch zustande, dass ein gewisser Anteil der Einstrahlung im transparenten Bauteil absorbiert wird, wodurch sich dieses etwas erwärmt. Von dieser Wärme fliesst wiederum ein Anteil ins Raum-

innere, der durch die *sekundäre Wärmeabgabe* q_i gegeben ist. Diese beiden Anteile führen zu einem strahlungsbedingten Energiestrom j_S ins Rauminnere, den man in einem *Gesamtenergiedurchlassgrad* g oder "g-Wert" zusammenfasst:

$$(3.3) \quad j_S = g \cdot I \quad , \quad g = \tau + q_i \quad .$$

Wir sind dabei weitgehend den Begriffsbildungen der DIN-Norm 67507 gefolgt. Der so definierte g-Wert stellt sich als geeigneter Parameter für einen Produktevergleich hinsichtlich der solaren Gewinne heraus.

3.2 Wärmetechnisches Verhalten von Fenstern

Gemäss Abb. 3.1 und den Definitionen (3.1) und (3.3) lässt sich für die Energiebilanz eines transparenten Bauteiles schreiben [Bin 83]:

$$(3.4) \quad Q = j_T - j_S = k \cdot \Delta T - g \cdot I \quad (= k_{\text{eff}} \cdot \Delta T) \quad .$$

Gegenüber opaken Bauteilen der Gebäudehülle, deren wärmetechnisches Verhalten im wesentlichen durch den k-Wert bestimmt wird, kommt jetzt bei transparenten Bauteilen ein Strahlungsgewinn hinzu. Die Optimierungsregel für opake Bauteile - je kleiner der k-Wert, desto geringer der Verlust - lässt sich daher nicht ohne weiteres auf Fenster ausdehnen, indem dort Massnahmen zur Absenkung des k-Wertes den Strahlungsgewinn vermindern können.

Die Durchlässigkeit für Solarstrahlung hängt jedoch nicht nur von materialtechnischen Eigenschaften des Fensters ab. Situationsspezifische Gegebenheiten wie Standort, Klima, Ausrichtung der Verglasung beeinflussen über den Strahlungsgewinn die Energiebilanz ebenfalls massgeblich. Zur Beurteilung und Optimierung eines Fenstersystems über eine längere Zeitperiode unter Einbezug von situationsspezifischen Gegebenheiten können in einem ersten Ansatz folgende Überlegungen gemacht werden:

Die Antwortzeit eines Fenstersystems auf Energieflüsse ist gering verglichen mit Wand- und Dachelementen. Die Verwendung einer stationären Gleichung (3.4) rechtfertigt sich also schon zum Teil wegen der relativ geringen Wärmespeichereffekte bei Fenstern. Werden für die Einstrahlung und die klimatischen Verhältnisse Mittelwerte über längere Zeitabschnitte herangezogen, so rechtfertigt sich die Verwendung von stationären Gleichungen ähnlich wie bei den transparenten Wärmedämmungen (Abschnitt 2.4.4) zusätzlich. Setzt man in (3.3) für I die Globalstrahlungsmenge [$\text{J}/\text{m}^2\text{a}$] über ein Jahr samt gebäudespezifischem Ausnutzungsgrad AG , so erhält man für den Ertrag aus der Solareinstrahlung:

$$(3.5) \quad J_S = g \cdot I \cdot A_G \quad , \quad [\text{J/m}^2\text{a}] \quad .$$

Die Verluste durch Wärmetransport lassen sich aus (3.1) errechnen, wenn man für ΔT die Heizgradtage HGT [K d/a] über ein Jahr einsetzt:

$$(3.6) \quad J_T = k \cdot \text{HGT} \cdot (24 \cdot 3600) \quad , \quad [\text{J/m}^2\text{a}] \quad .$$

Das Verhältnis von Einstrahlungsgewinn zu den Verlusten ergibt sich daher zu:

$$(3.7) \quad \frac{J_S}{J_T} = \frac{g}{k} \cdot \frac{I}{\text{HGT}} \cdot A_G \cdot \frac{1}{24 \cdot 3600} \quad .$$

Für die gegebene standort- und orientierungsspezifische Grösse I/HGT kann danach das für eine Nullbilanz $J_S/J_T = 1$ notwendige Verhältnis $(g/k)_0$ angegeben werden. Je nachdem, ob das Verhältnis g/k grösser bzw. kleiner als $(g/k)_0$ ist, überwiegt der Ertrag aus der Einstrahlung bzw. der Verlust aus dem Wärmetransport. Als erste Annäherung kann deshalb gesagt werden, dass je höher das Verhältnis g/k ist, desto besser ist die betreffende Verglasung aus energetischer Sicht einzustufen. Weiter kann für zwei Verglasungsvarianten mit *gleichem* g/k -Quotienten gesagt werden, dass an Standorten und Orientierungen, wo der Ertrag überwiegt (also insbesondere an südlichen Orientierungen), diejenige Verglasung mit hohen g - und k -Werten eine bessere Bilanz aufweist. Umgekehrt ist bei situationsspezifischen Gegebenheiten, wo der Verlust überwiegt, die Verglasungsvariante mit tiefen g - und k -Werten vorzuziehen.

In der Praxis bedeutet dies, dass an Standorten mangelnder Sonneneinstrahlung Mehrfachverglasungen mit selektiven Schichten die Energiebilanz verbessern. In sonnigen Lagen führen jedoch Verglasungen aus einfachem Klarglas zu einer besseren Nutzung der Solarenergie, sofern sich nicht massive Einstrahlungsüberschüsse ergeben, die weggelüftet oder durch Abschattungsvorrichtungen ferngehalten werden müssen. Durch eine solche Absenkung des Ausnutzungsgrades wird die passive Nutzung der Sonnenenergie wieder vermindert.

Es kann also für einen Verglasungstyp nie losgelöst vom Haus beurteilt werden, wie die Energiebilanz letztlich aussieht. Das wärmetechnische Verhalten eines Fenstersystems involviert immer ein komplexes Zusammenspiel zwischen den Anforderungen an Heizung, Kühlung und Ausleuchtung mit Tageslicht. Die Gewichtung der einzelnen Anforderungen hängt wiederum stark vom Haustyp, Klima und Benutzerverhalten ab [Sel 87].

So stellt das Fenster in seiner Hauptaufgabe, nämlich als Öffnung zu dienen, die in verschiedener Hinsicht den Bezug zur Umwelt herstellen soll, hinsichtlich der Ermittlung der Heiz- und Kühllast ein komplexes Bauteil der Gebäudehülle dar. Trotzdem ist man in der

glücklichen Lage zwei Kennwerte zu besitzen, die einen Produktvergleich erlauben und die als Grundwerte zur Berechnung eingesetzt werden können. Hinsichtlich der Nutzung der solaren Einstrahlung ist dies der g-Wert. Zur Beurteilung der wärmedämmenden Eigenschaften andererseits steht der k-Wert zur Verfügung.

3.3 Berechnung der Kenngrößen bei Fenstern aus IR-opaken Glasscheiben

Die meisten festen Substanzen absorbieren praktisch die ganze einfallende Strahlung in einer sehr dünnen Oberflächenschicht. Fensterglas stellt hierin eine Ausnahme dar, indem es bezüglich der Transmission *selektives Verhalten* zeigt: Nicht eingefärbte unbeschichtete Scheiben besitzen danach hohes Transmissionsvermögen für die kurzwellige Solarstrahlung unterhalb etwa 2,5 μm , sind aber weitgehend undurchlässig für die langwellige thermische Strahlung (2,5 - 50 μm). Bei Sonnenschutzgläsern ist durch die Einfärbung die Grenzwellenlänge gegen etwa 0,8 μm verschoben, wodurch auch die solare IR-Strahlung ferngehalten wird.

Die Eigenschaft von Glasscheiben, im Bereich der Wärmestrahlung opak zu sein, vereinfacht die Berechnung des Wärmedurchgangskoeffizienten Λ einer Mehrfachverglasung wesentlich, indem nur benachbarte Scheiben über die Strahlung wechselwirken können. Dadurch lässt sich der Wärmefluss durch die Verglasung senkrecht zur Scheibenebene als Wärmetransport durch ein Stapel in Serie geschalteter Einzelkomponenten behandeln, bestehend aus den Glasscheiben, deren eingeschlossenen Zwischenräumen und den Wärmeübergangswiderständen:

$$(3.8) \quad \frac{1}{k} = \frac{1}{\alpha_i} + \frac{1}{\alpha_a} + \sum_{i=1}^N \frac{d_i^{\text{Glas}}}{\lambda_i^{\text{Glas}}} + \sum_{i=1}^{N-1} \frac{1}{\Lambda_i^{\text{Raum}}} \quad .$$

Die Annahme IR-opaker Schichten in diesem Abschnitt vereinfacht nicht nur die Rechnungen, sondern stellt auch der Normalfall dar, indem die meisten Fenstersysteme aus Glasscheiben aufgebaut werden.

Bei Fenstersystemen, die Folien mit einer gewissen Durchlässigkeit im IR-Bereich enthalten, können mit einem Verfahren nach Rubin [Rub 82a] behandelt werden, das im Abschnitt 3.4 erläutert wird. Das dort gezeigte Verfahren eignet sich für alle Fenstersysteme und erlaubt zudem die exakte Bestimmung der einzelnen Temperaturniveaus der Trennschichten und zwar bei beliebiger solarer Einstrahlung. Der Vorteil, dass die gesuchten Energieströme unter anwendungsnahen Bedingungen geliefert werden, muss dort jedoch durch ein etwas aufwendigeres Rechenverfahren erkauft werden. Im Gegensatz dazu sind die Rechnungen in

diesem Abschnitt leicht überschaubar. Die Wärmeströme bei solarer Einstrahlung können auch hier durch einfache Superposition der sekundären Wärmeabgabe mit dem Wärmefluss ohne Einstrahlung bestimmt werden. Mit etwas zusätzlichem Aufwand können im Prinzip auch hier die Temperaturniveaus der einzelnen Trennschichten unter solarer Einstrahlung bestimmt werden. Dies erübrigt sich jedoch in guter Näherung, da der Einfluss der Temperaturniveaus auf den Betrag der Wärmewiderstände im allgemeinen eher gering ist.

3.3.1 Berechnung des k-Wertes

In diesem Unterabschnitt wird der Wärmetransport in den Räumen zwischen zwei benachbarten Glasscheiben behandelt. Dieser erfolgt über die drei grundlegenden Wärmetransportmechanismen *Strahlung*, *Leitung* und *Konvektion*. Zunächst lassen sich Leitung und Konvektion zusammenfassen zu einem einzigen effektiven Leitungsbeitrag. Weiter erfolgt dieser effektive Leitungsbeitrag ungekoppelt vom Strahlungstransport. Das liegt daran, dass Luft und andere Gase mit sehr schwachen Absorptionsbanden im IR-Bereich die Wärmestrahlung über Distanzen von der Größenordnung der Scheibenzwischenräume kaum absorbieren. Der Strahlungs- und der Leitungsbeitrag lassen sich daher als zwei parallel geschaltete Wärmedurchgangswiderstände $1/\Lambda_R$ und $1/\Lambda_C$ darstellen, die sich selbst zusammenfassen lassen zu einem einzigen Wärmedurchgangswiderstand R_i :

$$(3.9) \quad R_i^{\text{Raum}} = \frac{1}{\Lambda_i^{\text{Raum}}} = (\Lambda_R + \Lambda_C)^{-1} \quad .$$

Abb. 3.2 soll diese Reduktion auf ein einfaches Netzwerk von Widerständen in Serie illustrieren.

Die Widerstände der Scheibenzwischenräume hängen von den angrenzenden Temperaturen ab. Die Bestimmung des k-Wertes und der Temperaturniveaus muss deshalb iterativ erfolgen. Ausgehend von einer angenommenen (z.B. linearen) Verteilung der Starttemperaturen werden die Widerstände R_i ($i = 1, \dots, N$) berechnet. Aus den resultierenden Widerständen wird eine neue Temperaturverteilung mit Hilfe von:

$$(3.10) \quad T_{i+1} = T_i + \Delta T_i \quad , \quad \Delta T_i = \frac{R_i}{\sum_{i=1}^N R_i} \quad , \quad i = 1, \dots, N-1 \quad ,$$

berechnet. Diese neue Temperaturverteilung dient als Grundlage zu einer erneuten Be-

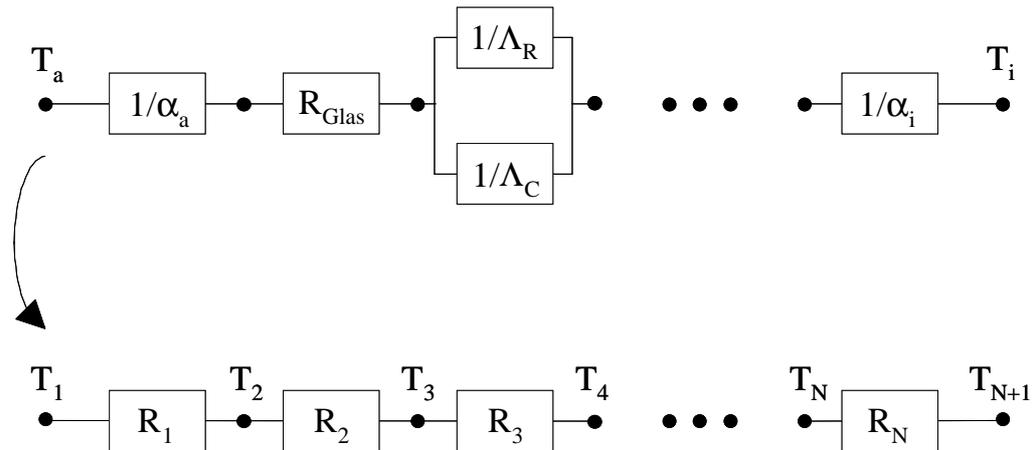


Abb. 3.2 Widerstandsnetzwerk einer Mehrfachverglasung. Die Widerstände lassen sich zusammenfassen zu Einheiten, die in Serie geschaltet sind. Da die Widerstände teilweise von den angrenzenden Temperaturen abhängen, müssen die Temperaturniveaus iterativ bestimmt werden.

stimmung der Widerstände. Werden die beschriebenen Schritte wiederholt, so stellt sich sehr rasch eine stationäre Verteilung der Temperaturniveaus ein. Das Verfahren konvergiert sehr gut; bleibt die Änderung der Temperaturniveaus bei zwei hintereinander durchgeführten Iterationen innerhalb einer vorgegebenen Schwelle (z.B. 0,01 °C), so kann der k-Wert bestimmt werden mit:

$$(3.11) \quad \frac{1}{k} = \sum_{i=1}^N R_i \quad .$$

3.3.1.1 Der Strahlungsbeitrag

Zwischen zwei gegenüberliegenden Glasscheiben 1 und 2 auf den Temperaturniveaus T_1 und T_2 fließt ein Nettostrahlungsstrom, der durch folgende Überlegungen bestimmt werden kann. Zunächst werden die Scheiben als grau emittierende IR-opake Flächen betrachtet. Für diese ist der Zusammenhang zwischen Reflexionsvermögen ρ_i und Emissionsvermögen ε_i gegeben durch:

$$(3.12) \quad \rho_i = 1 - \varepsilon_i \quad , \quad i = 1, 2 \quad .$$

Die Strahlungsleistungen ("Randradiositäten"), die von den Randflächen ausgehen, enthalten je einen emittierten Strahlungsbeitrag und einen reflektierten Anteil:

$$(3.13) \quad j_1 = \varepsilon_1 \cdot \sigma \cdot T_1^4 + (1 - \varepsilon_1) \cdot j_2 \quad ,$$

$$(3.14) \quad j_2 = \varepsilon_2 \cdot \sigma \cdot T_2^4 + (1 - \varepsilon_2) \cdot j_1 \quad .$$

Dabei wurde schon die Eigenschaft planparalleler Geometrie benutzt, wonach der gesamte Strahlungsstrom, der von der einen Fläche ausgeht, auf der anderen landet. Der Nettostrahlungsstrom zwischen den beiden Oberflächen beträgt:

$$(3.15) \quad j_R = j_1 - j_2 \quad ,$$

worin sich j_1 und j_2 leicht aus den beiden Gleichungen (3.13) und (3.14) bestimmen lassen. Man erhält den bekannten Ausdruck:

$$(3.16) \quad j_R = \frac{\sigma \cdot (T_1^4 - T_2^4)}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} - 1} \quad .$$

Durch das benutzte Verfahren der "Nettostrahlungsmethode" [Sie 80] sind darin auch die Mehrfachreflexionen korrekt aufsummiert. Für den Wärmeverlustkoeffizienten Λ_R definiert durch $j_R = \Lambda_R (T_1 - T_2)$, erhält man:

$$(3.17) \quad \Lambda_R = \frac{4\sigma \cdot T_R^3}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} - 1} \quad , \quad T_R^3 = \frac{1}{4} \cdot (T_1^2 + T_2^2) \cdot (T_1 + T_2) \quad .$$

Für die darin definierte Strahlungstemperatur T_R gilt für kleine Temperaturdifferenzen $\Delta T = T_1 - T_2$ in guter Näherung:

$$(3.18) \quad T_R \cong \frac{1}{2} \cdot (T_1 + T_2) \quad , \quad \Delta T \ll T_1, T_2 \quad .$$

3.3.1.2 Der Leitungsbeitrag oder der Wärmetransport in Gasen

Von einer Wärmeleitfähigkeit im Sinne des linearen Ansatzes von Biot-Fourier:

$$(3.19) \quad j_C \cong -\lambda \cdot \frac{dT}{dx} \quad ,$$

kann man für Gase nur sprechen, wenn die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle viel kleiner ist als die Linearabmessungen des Isolationsgefässes. Bei Normaldruck beträgt die mittlere freie Weglänge für ein Luftmolekül etwa $0,1 \mu\text{m}$. Für Gasschichtdicken im mm-Bereich, wie man sie in Fenstersystemen vorfindet, ist damit diese Bedingung wohl erfüllt. Die Wärmeleitfähigkeit λ erhält so die Bedeutung einer lokalen Eigenschaft des Gases. Nach der kinetischen Gastheorie ist die Wärmeleitfähigkeit λ proportional zu folgenden Grössen:

$$(3.20) \quad \lambda \propto \rho \cdot c_v \cdot \langle v \rangle \cdot \langle l \rangle \quad .$$

Die kinetische Gastheorie liefert darin für die mittlere Teilchengeschwindigkeit:

$$(3.21) \quad \langle v \rangle = \sqrt{\frac{8k \cdot T}{\pi \cdot m}} \quad , \quad (k = \text{Boltzmann - Konstante}) \quad ,$$

und für die mittlere freie Weglänge:

$$(3.22) \quad \langle l \rangle = \frac{1}{4\sqrt{2}\pi \cdot r^2 \cdot N} \quad ,$$

mit der Teilchenmasse m , dem effektiven für den Stoss wirksamen Radius der Teilchen r und der Teilchenzahldichte $N = p/kT$. Weiter ist:

$$(3.23) \quad \rho = m \cdot N \quad ,$$

die Dichte des Gases und c_v die spezifische Wärme. Die einzigen druckabhängigen Grössen in (3.20) sind somit die Dichte ρ und die mittlere freie Weglänge $\langle l \rangle$. Nachdem aber ρ proportional und $\langle l \rangle$ umgekehrt proportional zum Druck ist, folgt für die Wärmeleitfähigkeit λ , dass sie unabhängig vom Druck ist. Dies gilt jedoch nur für ausreichend hohe Drucke, wo die Energie bei den Zusammenstössen von Molekül zu Molekül weitergegeben wird:

Wenn durch Absenken des Druckes die mittlere freie Weglänge die Grössenordnung des Scheibenabstandes erreicht, werden die Moleküle in ihrer Eigenschaft als Energieträger eingeeignet. Die freie Weglänge kann sich nicht mehr in derselben Masse erhöhen, wie die Teilchenzahldichte weiterhin abnimmt. Die Teilchen fliegen schliesslich von Wand zu Wand, wobei der Wärmetransport über die Teilchenzahldichte proportional zum Druck wird. Unter diesen Bedingungen ist es offenbar sinnlos, von einem Temperaturgradienten des Gases zwischen den Platten zu sprechen. Jedoch kann man mit einer zum Ausdruck (3.19) analogen Beziehung:

$$(3.24) \quad j_C = -\Lambda_C \cdot (T_1 - T_2) \quad ,$$

ein Wärmeverlustkoeffizient Λ_C des verdünnten Gases definieren. Eine tiefer gehende Betrachtung, die auch die Stossprozesse mit der Wand einbezieht, liefert für diesen Wärmeverlustkoeffizienten einer Gasschicht der Dicke d [Wal 82]:

$$(3.25) \quad \Lambda_C = \frac{\lambda}{d + 2 \cdot \left(\frac{1}{a_1} + \frac{1}{a_2} - 1 \right) \langle l \rangle} \quad .$$

Darin ist λ die Wärmeleitfähigkeit des Gases ohne Randeffekte. Die Grössen a_1 und a_2 sind die Akkomodationskoeffizienten für die beiden Ränder. Sie geben den Bruchteil der Energie an, die ein Molekül bei einem Stoss im Mittel an die Wand abgibt und sind deshalb immer kleiner als eins. Man erkennt in (3.25), dass darin beide Grenzfälle $\langle l \rangle \ll d$ und $\langle l \rangle \gg d$ enthalten sind. Im ersten Fall erhält man für den Wärmeverlustkoeffizienten $\Lambda_C = \lambda/d$, im zweiten Fall erhält man ein zum Druck proportionales Verhalten.

3.3.1.3 Der Konvektionsbeitrag

Über der Gasfüllung zwischen zwei (vertikalen) Glasscheiben besteht ein Temperaturgefälle ΔT . Da wärmere Gasschichten gegenüber kühleren ein geringeres spezifisches Gewicht aufweisen, kommt es zu einer Bewegung des Gases infolge des unterschiedlichen Schweredruckes. Man spricht von *freier Konvektion*. Der Wärmetransport erfolgt dabei nicht mehr ausschliesslich durch zufällige Wärmebewegung der Moleküle, sondern durch kollektive Bewegung derselben in einer ganzen Gasschicht. Der Wärmeaustausch zwischen den Glasscheiben wird dadurch gegenüber einer Gasschicht ohne Konvektion gefördert.

Zur Beschreibung des konvektiven Wärmetransportes für ein gegebenes Problem müsste das Gleichungssystem bestehend aus Energie-, Impuls- und Kontinuitätsgleichung gelöst werden. Der Weg einer numerischen Lösung (analytische Lösungen existieren im allgemeinen nicht) wird zwar etwa in [Jon 85] für Fenstersysteme besprochen, ist aber mit grossem Aufwand verbunden. Üblicherweise stützt man sich deshalb auf experimentelle Untersuchungen oder theoretische Erwägungen an einem Modellsystem, wobei Modellgesetze die Übertragung auf andere physikalisch ähnliche Fälle erlauben. Das Aufsuchen von Übertragungsregeln läuft auf die Festlegung von dimensionslosen Kennzahlen hinaus, die bei physikalischer Aehnlichkeit bei Modell und Ausführung den gleichen Zahlenwert haben müssen. Im Fall freier Konvektion sind folgende Massgrössen beteiligt [Gri 55]:

d	charakteristische Länge (Scheibenabstand)	[m]
$g \cdot \beta = g/T$	Auftriebsbeschleunigung	[m/s ² K]
ρ	Dichte	[kg/m ³]
η	dynamische Zähigkeit	[kg/sm]
λ	Wärmeleitfähigkeit	[W/mK]
ΔT	Temperaturdifferenz	[K]
c_p	spezifische Wärme	[J/kgK]
Λ_C	Wärmeübergangszahl	[W/m ² K]

Aus Dimensionsüberlegungen oder auch aus Betrachtungen zu dem zugrunde liegenden Differentialgleichungssystem kann gefolgert werden, dass damit drei dimensionslose Kennzahlen gebildet werden können:

$$(3.26) \quad Nu = \Lambda_C \cdot \frac{d}{\lambda} \quad \text{Nusseltzahl} \quad ,$$

$$(3.27) \quad Gr = \frac{g \cdot \beta \cdot \Delta T \cdot d^3 \cdot \rho^2}{\eta^2} \quad \text{Grasshofzahl} \quad ,$$

$$(3.28) \quad Pr = \frac{\eta \cdot c_p}{\lambda} \quad \text{Prandtlzahl} \quad .$$

Nachdem wir schon für den Volumenausdehnungskoeffizienten $\beta = 1/T$ die Zustandsgleichung für ideale Gase benutzt haben, setzen wir nun auch für die Dichte ρ :

$$(3.29) \quad \rho = \frac{M_A}{R} \cdot \frac{p}{T} \quad (M_A = \text{Molekulargewicht}) \quad .$$

Der Zusammenhang zwischen diesen Kenngrößen muss sich in einer Funktion folgender Form darstellen lassen:

$$(3.30) \quad Nu = F(Gr, Pr) \quad .$$

Die an einem Modellversuch gewonnene Funktion F kann auf geometrisch ähnliche Ausführungen übertragen werden. Nach Gleichung (3.26) ist die gesuchte Wärmeübergangszahl gegeben durch das Produkt aus Nusseltzahl und der Wärmeübergangszahl λ/d einer ruhenden Gasschicht der Dicke d :

$$(3.31) \quad \Lambda_C = \frac{\lambda}{d} \cdot \text{Nu} \quad .$$

Für die Nusseltzahl verwenden wir in dieser Arbeit den von Niemann [Gri 55] aus einer grossen Zahl von Messungen bestimmten Ausdruck:

$$(3.32) \quad \text{Nu} = 1 + \frac{0,0236 \cdot (\text{Gr Pr})^{1,393}}{(\text{Gr Pr}) + 10100} \quad .$$

Gleichung (3.32) gilt für Gase und Flüssigkeiten zwischen zwei vertikalen Platten bis $\text{Gr Pr} < 10^8$, also im laminaren Bereich.

3.3.2 Berechnung des g-Wertes

3.3.2.1 Sekundäre Wärmeabgabe

Tritt diffuse oder direkte Solarstrahlung auf ein Fenstersystem bestehend aus N Schichten, so wird in jeder Einzelschicht des Systems ein gewisser Anteil absorbiert und in Wärme umgewandelt. Von der von einer Einzelschicht aufgenommenen Wärmemenge fliesst je ein Teil in den Innen- und in den Aussenraum, wobei die jeweiligen Anteile gegeben sind durch das Verhältnis der beiden Wärmedurchgangszahlen, die die betreffende Schicht gegen den Innen- bzw. den Aussenraum sieht. Die Beiträge jeder Einzelschicht können superponiert werden, so dass sich die gesamte *sekundäre Wärmeabgabe* (nach innen) ergibt mit:

$$(3.33) \quad q_i = k \cdot \sum_{i=1}^N A_i \sum_{j=1}^i \frac{1}{\Lambda_j} \equiv k \cdot \sum_{i=1}^N \frac{1}{\Lambda_i} \sum_{j=i}^N A_j \quad .$$

Darin sind A_i die Einzelabsorptionen der jeweiligen Schichten und $1/\Lambda_i$ die Wärmedurchgangswiderstände zwischen den Einzelschichten, wobei die Zählung aussen mit 1 beginnt ($\Lambda_1 = \alpha_a$) und weiter nach innen fortschreitet. Neben Kenntnis der Einzelabsorptionen A_i ist zur Bestimmung des g-Wertes gemäss (3.3) auch die Transmission des Gesamtsystems erforderlich. Die Gesamttransmission τ und die Einzelabsorptionen A_i ($i = 1, \dots, N$) lassen sich zusammen im Rahmen eines Unterabschnittes über die optischen Daten eines Fenstersystems behandeln:

3.3.2.2 Berechnung der optischen Daten eines Fenstersystems aus den Eigenschaften der Einzelkomponenten

Wir gehen aus von einem Stapel bestehend aus N planparallelen Schichten. Von jeder Schicht setzen wir das Transmissionsvermögen τ_i und die beiden Reflexionsvermögen ρ_i bzw. ρ_i' als bekannt voraus (Abb. 3.3). Die Absorptionsgrade sind damit ebenfalls bestimmt:

$$(3.34) \quad \alpha_i = 1 - \tau_i - \rho_i \quad ,$$

$$(3.35) \quad \alpha_i' = 1 - \tau_i - \rho_i' \quad .$$

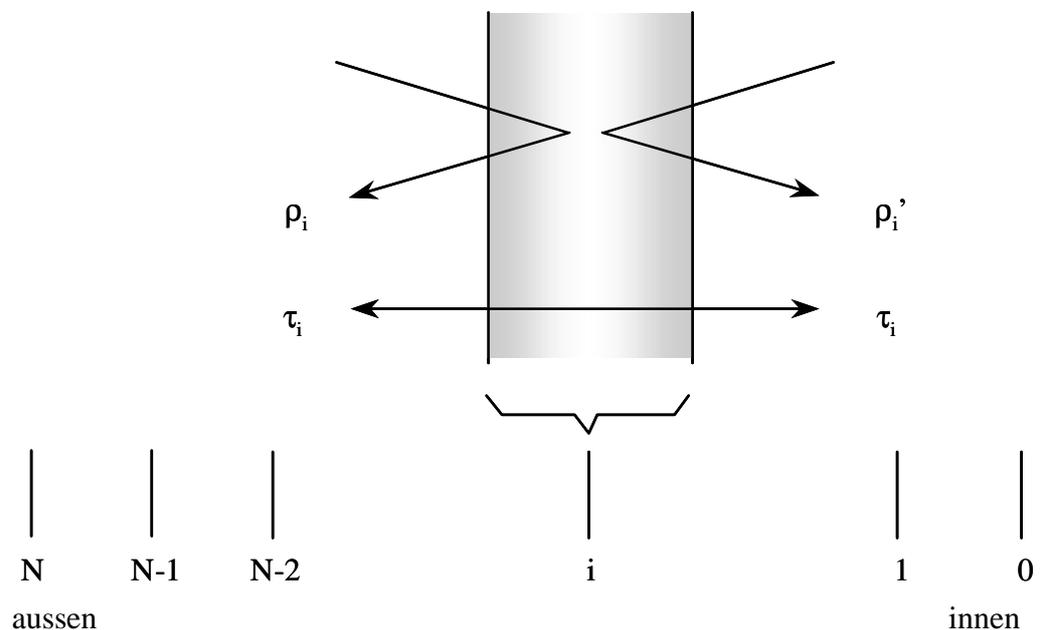


Abb. 3.3 Zur Berechnung des g -Wertes sollen die Gesamttransmission τ und die Einzelabsorptionen A_i der gezeichneten Konfiguration bestehend aus N Schichten (Scheiben) bestimmt werden. Die optischen Daten einer Einzelschicht i werden in diesem Abschnitt als bekannt vorausgesetzt (τ_i, ρ_i, ρ_i').

Die Zählung beginnt hier ausnahmsweise im Innenraum bei 0. Mit dieser 0-ten Schicht, die das Transmissionsvermögen $\tau_0 = 0$ besitzt, kann auch ein Absorber mit:

$$(3.36) \quad \alpha_0 = 1 - \rho_0 \quad ,$$

simuliert werden. Im Falle eines Fensters ohne Reflexion des Innenraumes setze man $\rho_0 = 0$.

Von der 0-ten Schicht her beginnend wird nun eine Schicht nach der anderen zum Gesamtsystem hinzugefügt, wobei jeweils die Gesamteigenschaften bestimmt werden. Die

optischen Grössen des Gesamtsystems bestehend aus den i Schichten werden mit T_i , R_i und a_i bezeichnet. Mit Hilfe der Definition folgender Grösse:

$$(3.37) \quad t_i = \frac{\tau_i}{1 - \rho'_i \cdot R_{i-1}} \quad ,$$

können die Gesamteigenschaften folgendermassen geschrieben werden:

$$(3.38) \quad T_i = t_i \cdot T_{i-1} \quad ,$$

$$(3.39) \quad R_i = r_i + t_i \cdot R_{i-1} \cdot \tau_i \quad ,$$

$$(3.40) \quad a_i = \alpha_i + t_i \cdot R_{i-1} \cdot \alpha_i' \quad .$$

Beginnend mit der Schicht 0 können so die Systemeigenschaften iterativ bestimmt werden, wobei die Startwerte der Iteration lauten:

$$(3.41) \quad T_0 = \alpha_0 \quad ,$$

$$(3.42) \quad R_0 = 1 - \alpha_0 = \rho_0 \quad .$$

Nach N Iterationen sind die Eigenschaften des Gesamtsystems bestimmt. Für das gesuchte Transmissionsvermögen erhält man:

$$(3.43) \quad \tau = t_1 \cdot \dots \cdot t_N \quad .$$

Für die Einzelabsorptionen A_i des Systems aus N Schichten kann gezeigt werden, dass gilt:

$$(3.44) \quad A_i = (t_N \cdot \dots \cdot t_{i+1}) \cdot a_i \quad , \quad (A_N = a_N) \quad .$$

Für den einfachen Fall, einer Doppelverglasung mit einem Innenraum ohne Reflexion ($R_0 = 0$, $T_0 = \alpha_0 = 1$) erhält man die bekannten Ausdrücke:

$$(3.45) \quad \tau = \frac{\tau_1 \cdot \tau_2}{1 - \rho'_1 \cdot \rho_2} \quad ,$$

$$(3.46) \quad A_1 = \alpha_1 + \frac{\alpha'_1 \cdot \tau_1 \cdot \tau_2}{1 - \rho'_1 \cdot \rho_2} \quad ,$$

$$(3.47) \quad A_2 = \frac{\alpha_2 \cdot \tau_1}{1 - \rho'_1 \cdot \rho_2} \quad ,$$

wobei hier jedoch wieder die übliche Zählung, die bei 1 mit der Aussenscheibe beginnt, verwendet wurde.

Bei der gezeigten Einbettungsmethode nach Edwards [Edw 77] sind alle Vielfachreflexionen korrekt aufsummiert. Sie ist äquivalent zu anderen Standardverfahren wie etwa das Ray-Tracing-Verfahren oder die Netto-Strahlungsmethode [Sie 80]. Ausgangspunkt ist dabei im Prinzip immer ein $2N+2$ -faches lineares Gleichungssystem. Wegen der speziellen Gestalt der Ausgangsmatrix erübrigt sich durch das gezeigte Iterationsverfahren eine Inversion dieser Matrix.

Bei [Pla 88] findet man eine Erweiterung der Methode auf Schichten, an denen die Gesamtintensität in einen direkten und einen isotrop-diffusen Anteil aufgespalten wird. Damit können auch transparente Wärmedämmmaterialien behandelt werden.

3.3.2.3 Grundlagen zur Berechnung der optischen Daten einer Einzelkomponente

Tritt eine ebene elektromagnetische Welle auf eine Grenzfläche zwischen zwei Medien, so wird ein Anteil reflektiert, der andere transmittiert. Das Reflexionsvermögen R und das Transmissionsvermögen T ist hierbei durch die *Fresnelformeln* gegeben [Bor 80]:

$$(3.48) \quad R_p = \frac{\operatorname{tg}^2(\Theta_i - \Theta_t)}{\operatorname{tg}^2(\Theta_i + \Theta_t)} \quad , \quad T_p = 1 - R_p \quad ,$$

$$(3.49) \quad R_s = \frac{\sin^2(\Theta_i - \Theta_t)}{\sin^2(\Theta_i + \Theta_t)} \quad , \quad T_s = 1 - R_s \quad .$$

Mit den Indizes p (parallel) und s (senkrecht) werden die Polarisationsrichtungen bezüglich der Einfallsebene bezeichnet. Der Zusammenhang zwischen dem Brechungswinkel Θ_t und dem Einfallswinkel Θ_i (Abb. 3.4) ist dabei gegeben durch:

$$(3.50) \quad n_2 \cdot \sin \Theta_t = n_1 \cdot \sin \Theta_i \quad ,$$

worin n_1 und n_2 die Brechindizes der beiden Medien darstellen. Bei senkrechtem Einfall wird die Unterscheidung zwischen paralleler und senkrechter Komponente hinfällig. Reflexions- und Transmissionsvermögen sind dann gegeben durch:

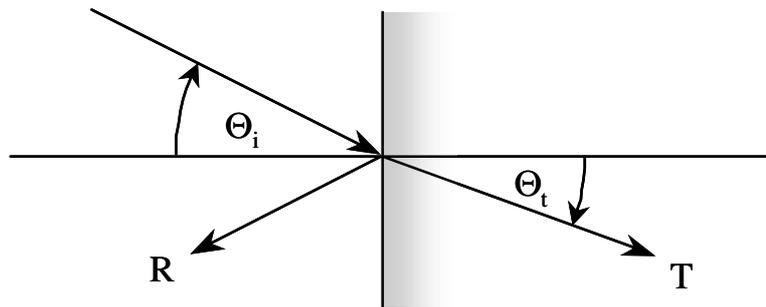


Abb. 3.4 Brechung und Reflexion einer ebenen Welle an der Grenzfläche zwischen zwei Medien der Brechindizes n_1 und n_2 .

$$(3.51) \quad R = \left(\frac{n_2/n_1 - 1}{n_2/n_1 + 1} \right)^2, \quad T = 1 - R.$$

Für unpolarisierte "natürliche" Einstrahlung gilt ausserdem:

$$(3.52) \quad R = \frac{1}{2} \cdot (R_p + R_s), \quad T = \frac{1}{2} \cdot (T_p + T_s).$$

Zur Bestimmung der optischen Eigenschaften einer homogenen Glasplatte oder Folie müssen die auftretenden Mehrfachreflexionen aufsummiert werden. Dazu können Standardverfahren wie das Ray-Tracing-Verfahren oder die Netto-Strahlungsmethode [Sie 80] angewandt werden. Man erhält damit für das Transmissions-, Reflexions- und Absorptionsvermögen:

$$(3.53) \quad \tau = \frac{t \cdot (1 - R)^2}{1 - t^2 \cdot R^2},$$

$$(3.54) \quad \rho = R + \frac{(1 - R)^2 \cdot t^2 \cdot R}{1 - t^2 \cdot R^2},$$

$$(3.55) \quad \alpha = \frac{(1 - R) \cdot (1 - t)}{1 - t \cdot R},$$

wobei wegen der Energieerhaltung $\tau + \rho + \alpha = 1$ gilt. Mit t wird der transmittierte Anteil bei einem einfachen Durchgang in der Schicht bezeichnet. Dieser Anteil ist wegen der schwachen Absorption gegeben durch das *Beer'sche Extinktionsgesetz*:

$$(3.56) \quad t = \exp(-k \cdot d / \cos\Theta_t) \quad .$$

Darin ist k der Extinktionskoeffizient und $d/\cos\Theta_t$ der Weg des Strahles in einer Schicht der Dicke d . Interferenzeffekte brauchen solange nicht berücksichtigt zu werden, als die Dicke der Einzelkomponenten gross gegenüber der Wellenlänge des Lichtes ist.

Die Grundbestandteile eines Fensters (Gläser, Kunststoffe) sind Dielektrika. Bei diesen ist der imaginäre Anteil des Brechindex $k\lambda/4\pi$ verschwindend klein. Für das umgebende Medium (Gas, Vakuum) kann der Brechindex mit $n_1 = 1$ festgelegt werden. Bei bekanntem Brechindex n_2 (Realteil) und bekanntem Extinktionskoeffizienten k können daher mit Hilfe der Ausdrücke (3.48) bis (3.56) die optischen Daten einer Einzelkomponente bestimmt werden. Die Eigenschaften des mehrkomponentigen Gesamtsystems können im weiteren nach den Ausführungen in Abschnitt 3.3.2.2 erfolgen.

Dabei muss darauf geachtet werden, dass die optischen Eigenschaften zunächst für jeden Winkel, für beide Polarisationsrichtungen und für jede Wellenlänge berechnet werden müssen, bevor Mittelwerte bestimmt werden. So ergeben sich die *solare Transmission* τ_S oder die *Lichttransmission* τ_L durch Gewichtung mit den entsprechenden Spektren:

$$(3.57) \quad \tau_S = \frac{\int_0^\infty \tau(\lambda) \cdot S(\lambda) \cdot d\lambda}{\int_0^\infty S(\lambda) \cdot d\lambda} \quad ,$$

$$(3.58) \quad \tau_L = \frac{\int_0^\infty \tau(\lambda) \cdot S(\lambda) \cdot E(\lambda) \cdot d\lambda}{\int_0^\infty S(\lambda) \cdot E(\lambda) \cdot d\lambda} \quad .$$

Darin bedeutet $S(\lambda)$ das solare Spektrum und $E(\lambda)$ die Empfindlichkeitsfunktion des menschlichen Auges, wie sie etwa der DIN-Norm 67507 entnommen werden können. Entsprechende Ausdrücke gelten auch für das Reflexions- und das Absorptionsvermögen. Bei vielen Klargläsern sind die optischen Eigenschaften annähernd konstant über das solare Spektrum, die Dispersion ist also gering. Verwendung von über ein Band gemittelter optischer Konstanten führt dann nicht zu erheblichen Fehlern [Rub 82b].

Bei völlig isotroper Intensitätsverteilung der einfallenden Strahlung kann das *diffuse* oder *hemisphärische Transmissionsvermögen* bestimmt werden mit:

$$(3.59) \quad \tau(\lambda)_{\text{dif}} = 2 \cdot \int_0^{\pi/2} \tau(\lambda, \Theta) \cdot \sin\Theta \cdot \cos\Theta \cdot d\Theta$$

Bei dieser Mittelung über den Halbraum wurde isotrope Einstrahlung vorausgesetzt.

Damit ist gezeigt, dass zur Festlegung der optischen Systemeigenschaften im Prinzip Kenntnis des Brechindex n_2 (Realteil) und des Extinktionskoeffizienten k für jede der Einzelkomponenten genügt. Diese können bestimmt werden durch (spektrale) Messung des Reflexionsvermögens R und des Transmissionsvermögens τ für normalen Einfall. Dieser Weg wurde in [Fur 88] besprochen. Dort findet man die optischen Daten für Ein- und Mehrfachverglasungen tabelliert.

3.4 Berechnung der Energiebilanz und der Kenngrößen für beliebige Fenstersysteme unter anwendungsnahen Bedingungen

Das hier dargestellte Verfahren geht auf Rubin [Rub 82 a] zurück. Es können damit Fenstersysteme bestehend aus einer beliebigen Zahl planparalleler Einzelkomponenten behandelt werden. Das Rechenverfahren liefert dabei sowohl die Temperaturniveaus, als auch die Energiebilanz unter anwendungsnahen Randbedingungen. Mit diesen Randbedingungen sind die solare Einstrahlung, die Wärmeübergänge an den Rändern sowie Innen- und Aussentemperatur gemeint. Das Verfahren besitzt weiter den Vorteil, dass damit auch Fenstersysteme berechnet werden können, die Kunststoffolien mit einer endlichen Durchlässigkeit im IR-Bereich besitzen. Solche Systeme, bei denen also auch nichtbenachbarte Einzelkomponenten über Strahlung wechselwirken, lassen sich nicht mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Modell von in Serie geschalteten Wärmewiderständen behandeln. Das dortige Verfahren besitzt jedoch den Vorzug, dass es im Falle IR-opaker Einzelkomponenten (Glasscheiben) den k -Wert auf sehr durchsichtige Art liefert, indem dazu einfach die Widerstände der Einzelschichten addiert werden müssen. Das Problem der Energiebilanz unter solarer Einstrahlung wird dort bloss im Sinne einer Superposition der sich dadurch ergebenden Energieflüsse angegangen, wobei im allgemeinen aber die Rückwirkung der Temperaturniveaus auf die einzelnen Wärmedurchgangswiderstände vernachlässigt wird. In dem Verfahren nach Rubin sind demgegenüber die Temperaturniveaus und ihre Rückwirkungen in dem Sinn in den Rechenprozess einbezogen, als solange iteriert wird, bis diejenige Temperaturverteilung gefunden ist, für die sich an jeder Einzelschicht eine korrekte Energiebilanz ergibt.

Wir gehen aus von einem System aus N Schichten, wie in Abb. 3.5 dargestellt:

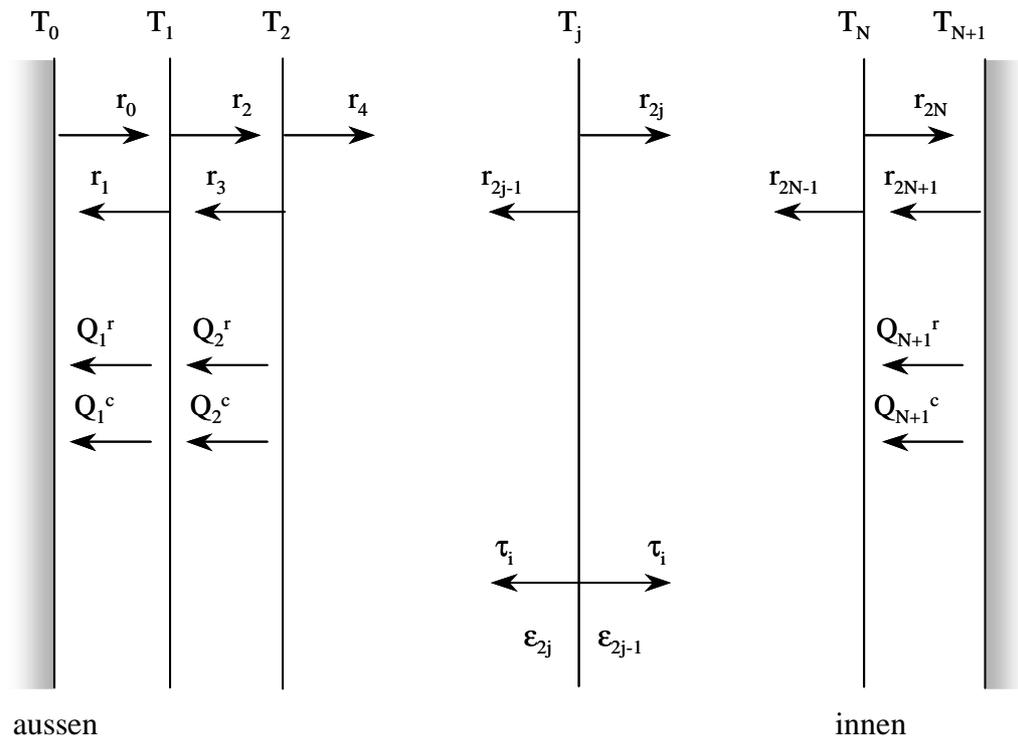


Abb. 3.5 System aus N Schichten, dessen energetisches Verhalten berechnet werden soll. Die Zählung beginnt aussen bei der Schicht 1. Die Indizierung der Oberflächen ist speziell an der j-ten Schicht dargestellt. Eingetragen sind zudem die Energieflüsse, wie sie zur Beschreibung des wärmetechnischen Verhaltens im Text verwendet werden.

Zunächst wollen wir uns für alle Zwischenräume den Nettowärmetransport in Abhängigkeit von den Temperaturniveaus verschaffen. Der Ausdruck für den Leitungsanteil kann sofort hingeschrieben werden:

$$(3.60) \quad Q_i^c = \Lambda_i^c \cdot (T_i - T_{i+1}) \quad , \quad i = 1, \dots, N+1 \quad .$$

Mit Λ_i^c sind die Wärmeübergangszahlen für Leitung gemeint. In ihnen soll sowohl der Leitungs- als auch der Konvektionsanteil eingeschlossen sein. Für unsere Zwecke erweist sich eine Matrizendarstellung als günstiger:

$$(3.61) \quad Q_i^c = \sum_{j=1}^{N+1} M_{ij}^c T_j \quad .$$

Dabei ist die Matrix M_{ij}^c , die uns die Netto-Leitungsflüsse bei gegebenen Temperatur-niveaus vermittelt, sehr einfach zu finden; es sind bloss die beiden Hauptdiagonalen mit den $\pm \Lambda_i^c$ besetzt. Für den Netto-Strahlungstransport muss hingegen ein etwas grösserer Aufwand betrieben werden. Zur korrekten Aufsummierung aller Mehrfachreflexionen wird in jeder Zwischenschicht der Strahlungsfluss in einen von links nach rechts und in einen von rechts nach links fliessenden Anteil aufgeteilt. Diese Einzelflüsse setzen sich je zusammen aus einem Strahlungsanteil, einem reflektierten Anteil und einem transmittierten Anteil, gemäss:

$$(3.62) \quad r_{2j} = \varepsilon_{2j} \cdot \sigma \cdot T_j^4 + \rho_{2j} \cdot r_{2j+1} + \tau_j \cdot r_{2j-2} \quad , \quad j = 0, \dots, N \quad ,$$

$$(3.63) \quad r_{2j-1} = \varepsilon_{2j-1} \cdot \sigma \cdot T_j^4 + \rho_{2j-1} \cdot r_{2j-2} + \tau_j \cdot r_{2j+1} \quad , \quad j = 1, \dots, N+1 \quad .$$

Die IR-Daten seien für jede Schicht als bekannt vorausgesetzt, wobei jeweils wegen der Energieerhaltung gilt:

$$(3.64) \quad 1 = \tau_j + \rho_{2j} + \varepsilon_{2j} \quad (\tau_0 = 0) \quad , \quad j = 0, \dots, N \quad ,$$

$$(3.65) \quad 1 = \tau_j + \rho_{2j-1} + \varepsilon_{2j-1} \quad (\tau_{N+1} = 0) \quad , \quad j = 1, \dots, N+1 \quad .$$

Wir haben dabei angenommen, dass die beiden Oberflächen einer Schicht dieselbe Temperatur aufweisen. Dies rechtfertigt sich dadurch, dass die beiden Oberflächen bloss durch einen sehr kleinen thermischen Widerstand getrennt sind. Die Gleichungen (3.62) und (3.63) können in Matrixform dargestellt werden:

$$(3.66) \quad \sum_{j=0}^{2N+1} N_{ij}^r r_j = S_i \quad , \quad S_i = \varepsilon_i \cdot \sigma \cdot T_i^4 \quad .$$

Inversion der $(2N+2) \times (2N+2)$ -Matrix N_{ij}^r liefert die Einzelflüsse:

$$(3.67) \quad r_i = \sum_{j=0}^{2N+1} [N^r]_{ij}^{-1} S_j \quad .$$

Durch einige elementare Zeilen- und Spaltenumformungen erhält man für die Netto-Strahlungsflüsse $Q_i^r = r_i - r_{i-1}$ ($i = 1, \dots, N+1$) den zu (3.61) analogen Ausdruck:

$$(3.68) \quad Q_i^r = \sum_{j=0}^{N+1} M_{ij}^r T_j^4 \quad .$$

Damit sind die Netto-Strahlungsflüsse durch die Temperaturniveaus ausgedrückt. Im Gegensatz zu (3.61), wo sich ein lineares Gleichungssystem in T_j ergibt, erhält man jetzt für die Strahlung ein solches in T_j^4 .

Für jede Einzelschicht kann nun eine Energiebilanz aufgestellt werden. Im stationären Gleichgewicht muss nämlich die solare Absorption $A_i \cdot I$ der Einzelschicht gerade den dort anfallenden Netto-Energieströmen entsprechen. Die Einzelabsorptionen A_i können dabei mit den Methoden in Abschnitt 3.3.2 bestimmt werden. Die Energiebilanzen lassen sich schreiben:

$$(3.69) \quad \Delta_i(\{T_k, k = 1, \dots, N\}) = 0, \quad i = 1, \dots, N.$$

wobei also mit Δ_i die Funktion:

$$(3.70) \quad \Delta_i = (Q_i^r - Q_{i+1}^r) + (Q_i^c - Q_{i+1}^c) - A_i \cdot I,$$

gemeint ist. Durch diese N Gleichungen werden die Temperaturniveaus festgelegt, wobei ihre Bestimmung durch ein iteratives Verfahren erfolgt. Dazu geht man von einer (z.B. linearen) Anfangstemperaturverteilung T_k^0 aus. Die exakten Temperaturen können geschrieben werden:

$$(3.71) \quad T_k = T_k^0 + \delta T_k, \quad k = 1, \dots, N.$$

Wir entwickeln das Gleichungssystem (3.69) nach den Temperaturen:

$$(3.72) \quad \begin{aligned} \Delta_i(\{T_k\}) &= \Delta_i(\{T_k^0 + \delta T_k\}) = 0 \\ &\cong \Delta_j(\{T_k^0\}) + \sum_{j=1}^N \left[\frac{\partial \Delta}{\partial T} \right]_{ij} \cdot \delta T_j. \end{aligned}$$

Die Temperaturabweichungen δT_k erhält man durch Inversion der Matrix $[\partial \Delta / \partial T]$:

$$(3.73) \quad \delta T_i^1 = - \sum_{j=1}^N \left[\frac{\partial \Delta}{\partial T} \right]_{ij}^{-1} \Delta_j(\{T_k^0\}).$$

Eine neue Temperaturverteilung ergibt sich mit:

$$(3.74) \quad T_k^1 = T_k^0 + \delta T_k^1.$$

Mit diesen neuen Temperaturen wird die ganze Prozedur beginnend mit Gleichung (3.72) wiederholt. Das Verfahren konvergiert sehr rasch gegen die gesuchte Temperaturverteilung und kann abgebrochen werden, wenn die Bilanzen (3.69) eine gewünschte Genauigkeit erreichen. Wenn die Temperaturniveaus bekannt sind, so können mit (3.61) und (3.68) die Flüsse berechnet werden. Von primärem Interesse zur Berechnung der Heiz- bzw. Kühl-last ist der Netto-Wärmestrom aus dem Innern. Er beträgt:

$$(3.75) \quad Q_{\text{Netto}} = Q_{N+1}^r + Q_{N+1}^c - \tau \cdot I \quad ,$$

worin mit τI die solare Transmission gemeint ist. Das solare Transmissionsvermögen des Gesamtsystemes τ kann mit den in Abschnitt 3.3.2 angegebenen Verfahren bestimmt werden. Damit kann nun ein effektiver k-Wert definiert werden:

$$(3.76) \quad k_{\text{eff}} = \frac{Q_{\text{Netto}}}{T_{N+1} - T_0} \quad .$$

Im Fall ohne solare Einstrahlung ($I = 0$) erhält k_{eff} die bisherige Bedeutung eines Wärmedurchlasskoeffizienten samt Wärmeübergängen im Innen- und Aussenraum. Bei solarer Einstrahlung $I \neq 0$ ergibt sich eine gewisse Kompensation des Verlustes durch den Wärmetransport, zunächst durch die direkte Transmission $\tau \cdot I$, aber auch durch eine Aenderung der Temperaturniveaus (sekundäre Wärmeabgabe nach innen). Der effektive k-Wert wird dadurch kleiner und kann negativ werden, sofern die Einstrahlungsgewinne überwiegen.

Zur Berechnung des g-Wertes wird der Verlust durch Wärmetransport aus dem Rauminnern einmal mit solarer Einstrahlung, einmal ohne berechnet. Die Differenz der beiden Grössen dividiert durch die solare Einstrahlung ergibt die sekundäre Wärmeabgabe.

$$(3.77) \quad q_i = \frac{(Q_{N+1}^r + Q_{N+1}^c)_{I=0} - (Q_{N+1}^r + Q_{N+1}^c)_{I \neq 0}}{I} \quad .$$

Das vorgestellte Verfahren liefert ein stationäres Energiegleichgewicht ohne Berücksichtigung von Wärmespeichereffekten, wie sie bei wechselnden Randbedingungen auftreten. Es wird also angenommen, dass die Umgebungsbedingungen wie Windgeschwindigkeit, Intensität und Position der Sonne, Innen- und Aussentemperatur nur langsam ändern verglichen mit der Antwortzeit des Fenstersystems. Die Wärmeübergänge im Innen- und Aussenraum können dabei folgendermassen berücksichtigt werden:

3.4.1 Wärmeübergang innen

Der Leitungsbeitrag ergibt sich aus der freien Konvektion an einer senkrechten ebenen Platte. Für diese gilt nach [Fri 83]:

$$(3.78) \quad \alpha_i^c = \Lambda_{N+1}^c = \frac{\lambda}{x} \cdot \text{Nu} = \frac{\lambda}{x} \cdot 0,525 \cdot (\text{Gr}_x \text{Pr})^{0,25} .$$

Darin entspricht $x \cong 1\text{m}$ der charakteristischen Länge des Problems, d.h. der Fensterhöhe. Wie schon im Problem der freien Konvektion zwischen zwei Platten (3.32), kann auch hier die Nusseltzahl Nu als Funktion des Produktes aus der Prandtlzahl Pr und der Grashofzahl Gr dargestellt werden. Für Luft erhält man daraus eine einfache Näherung, die nur noch das Temperaturgefälle ΔT über der Randzone enthält [Fra 86]:

$$(3.79) \quad \alpha_i^c = \Lambda_{N+1}^c = 1,77 \cdot (\Delta T)^{0,25} .$$

Für den Strahlungsbeitrag kann folgende Überlegung gemacht werden: Die meisten Wandmaterialien des Innenraumes besitzen ein Emissionsvermögen nahe bei 98%. Zudem wirkt das Rauminnere bezüglich der Fensteröffnung wie ein schwarzer Körper. Das Emissionsvermögen des Innenraumes kann daher $\varepsilon_{2N+1} = 1$ gesetzt werden. Besteht die Innenscheibe des Fenstersystems aus einem IR-opaken Material, so ist eine Aufteilung der inneren Wärmeübergangszahl in einen Leitungs- und einen Strahlungsanteil zulässig:

$$(3.80) \quad \alpha_i = \alpha_i^c + \alpha_i^r ,$$

mit einem Leitungsanteil nach (3.79) und einem Strahlungsanteil:

$$(3.81) \quad \alpha_i^r = \varepsilon_{2N} \cdot 4\sigma \cdot T_R^3 .$$

3.4.2 Wärmeübergang aussen

Der Wärmeübergang durch Leitung an der Aussenseite erfolgt durch erzwungene Konvektion über Windeinflüsse. Nach [Fra 86] wird dafür gesetzt:

$$(3.82) \quad \alpha_a^c = \Lambda_1^c = 8,1 \cdot v^{0,6} \quad \text{dem Wind zugewandt} ,$$

$$(3.83) \quad \alpha_a^c = \Lambda_1^c = 3,5 + 1,4 \cdot v \quad \text{dem Wind abgekehrt} .$$

Darin ist v die Windgeschwindigkeit [m/s]. Zu Vergleichszwecken wird normalerweise Ausdruck (3.82) mit einer mittleren Wingschwindigkeit von $v = 2$ m/s benützt.

Mit denselben Überlegungen wie in 3.4.1 kann für das Emissionsvermögen der Umgebung $\epsilon_0 = 1$ gesetzt werden. Üblicherweise besteht die Aussenscheibe aus einem IR-opaken Material, so dass sich auch hier der gesamte Wärmeübergang additiv aus einem Leitungs- und einem Strahlungsbeitrag ergibt:

$$(3.84) \quad \alpha_a = \alpha_a^c + \alpha_a^r \quad ,$$

mit einem Leitungsanteil nach (3.82) bzw. (3.83) und einem Strahlungsanteil:

$$(3.85) \quad \alpha_a^r = \epsilon_1 \cdot 4\sigma \cdot T_R^3 \quad .$$

Damit ist erst der Strahlungsverlust an die Umgebung berücksichtigt, welche sich annähernd auf Aussenlufttemperatur befindet. In [Fra 86] wird zusätzlich ein Strahlungsverlust durch Abstrahlung an den klaren Himmel berücksichtigt. Dabei wird eine Emissivität des Himmels eingeführt, welche vom Feuchtegehalt der Luft und dem Bedeckungsgrad abhängt. Unter zusätzlicher Berücksichtigung des Formfaktors zwischen Fensterfläche und Himmel kann ein Zusatzverlust ΔR durch das Strahlungsloch zwischen 8-14 μm berechnet werden. Dieser wird als zusätzlicher Verlustterm in der Energiebilanz der Aussenscheibe mit in die Rechnung einbezogen.

3.5 Strategien zur Stopfung des Wärmelecks bei Fenstern

Betrachtet man ein Fenstersystem als ein Stapel planparalleler Einheiten, deren Einzelwiderstände sich gemäss (3.11) zu einem Gesamtwiderstand addieren, so lässt sich daraus eine erste Grundregel zur Absenkung des k -Wertes angeben. Ein Netzwerk bestehend aus lauter in Serie geschalteten Widerständen wird dominiert durch den grössten Widerstand in der Kette. Es genügt demnach, die Wärmedurchgangszahl *einer* Einzelkomponente möglichst tief zu halten.

In Abschnitt 3.3.1 wurde gezeigt, dass in einer Einzelkomponente gleich mehrere Wärmetransportmechanismen einen Beitrag leisten können. Dies sind namentlich der Strahlungs- und der Leitungs- bzw. Konvektionsbeitrag, wobei sich jetzt also gemäss (3.9) die betreffenden Wärmeübergangszahlen addieren. In einem solchen Netzwerk parallel geschalteter Wärmedurchgangswiderstände dominiert der kleinste Widerstand. Daraus lässt sich eine zweite Grundregel ableiten: Es lohnt sich kaum, einen Wärmeverlustkanal zu stopfen, wenn parallel

dazu ein weit grösseres Leck offen gelassen wird. Massnahmen zur Reduktion der Wärmedurchgangszahl einer Einzelkomponente beinhalten deshalb immer eine ganzheitliche Berücksichtigung sämtlicher Verlustkanäle.

Ziel dieses Abschnittes ist eine quantitative Verifizierung dieser Grundregeln. In diese Überlegungen sollen aber neben den wärmedämmenden Eigenschaften auch die sich ergebenden optischen Eigenschaften miteinbezogen werden. Es zeigt sich, dass Massnahmen zur Optimierung der wärmedämmenden Eigenschaften dem Wunsch nach hoher Transparenz oft entgegenlaufen. Gemäss Abschnitt 3.2 haben ja aber gerade auch die Transmissionseigenschaften einen wesentlichen Einfluss auf die Energiebilanz eines Fenstersystems.

Eine *Einfachverglasung* erhält ihre isolierende Wirkung praktisch ausschliesslich durch die Wärmeübergänge der beiden Grenzschichten, bestehend aus konvektierenden Luftschichten; der Wärmewiderstand der Glasscheibe ist daneben praktisch vernachlässigbar. Mit den Wärmeübergangszahlen $\alpha_i = 8 \text{ W/m}^2\text{K}$ und $\alpha_a = 23 \text{ W/m}^2\text{K}$ nach DIN-Norm 4108 erhält man so gemäss (3.2) für den k-Wert einer Einfachverglasung $5,6 \text{ W/m}^2\text{K}$. Beide Wärmeübergangszahlen enthalten einen Strahlungsbeitrag sowie einen Konvektionsbeitrag (freie Konvektion innen, erzwungene Konvektion aussen) und werden im folgenden zu Vergleichszwecken beibehalten.

Die tiefe Wärmeleitfähigkeit eines ruhenden Gases wird erst in einer *Zweifachverglasung* genutzt, sofern man den Scheibenabstand so klein wählt, dass die Konvektion gering bleibt. Das Verhalten des Wärmewiderstandes in Abhängigkeit vom Scheibenabstand ist in Abb. 3.6 dargestellt.

Man erkennt dort zunächst, dass *Schwergase* wie Argon und Krypton die Wärme schlechter leiten als Luft. Zwar setzt insbesondere bei Krypton die Konvektion schon bei kleineren Spaltdicken ein, so dass der optimale Scheibenabstand schon früher erreicht wird. Trotzdem bringen Schwergase hinsichtlich der wärmedämmenden Eigenschaften gegenüber Luft eine erhebliche Verbesserung. Die Möglichkeit, kleine Scheibenabstände zu wählen, ist sogar ein wichtiger Grund, Schwergase einzusetzen. Zudem werden dadurch weder die Transmission noch die Farbneutralität beeinflusst.

Der Einsatz von Schwergasen ist eine typische Massnahme, die sich erst richtig lohnt, wenn zusätzlich auch der *Strahlungsaustausch* zwischen den Scheibeninnenflächen reduziert wird. Normales Floatglas besitzt ein Emissionsvermögen von $\varepsilon = 0,84$, wodurch sich gemäss (3.17) ein Strahlungsanteil an den Wärmedurchgangskoeffizienten von $\Lambda_R = 3,7 \text{ W/m}^2\text{K}$ ergibt. Schon bei Zweischeibenverglasungen mit Luftfüllung ist damit der Strahlungsanteil an den Wärmedurchgangskoeffizienten etwa doppelt so gross wie der Konvektionsanteil Λ_C . Die Reduktion des Strahlungsanteils ergibt sich daher als folgerichtige weitere Massnahme. Dies kann erreicht werden, indem auf die Scheibenoberfläche eine IR-reflektierende Schicht aufgebracht wird. Im Sinne der erwähnten Grundregeln sollte diese Massnahme an einer Stel-

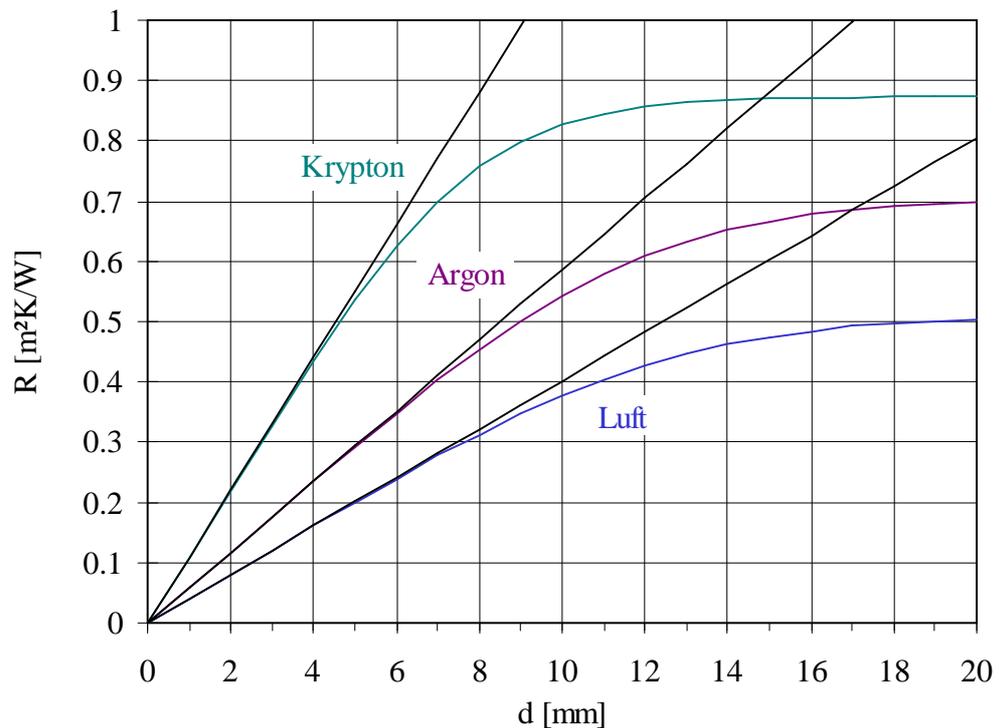


Abb. 3.6 Wärmewiderstand R einer vertikalen Gasschicht in Abhängigkeit von der Spaltdicke für Luft, Argon und Krypton. Im linearen Bereich herrscht reine Leitung. Das Abknicken vom linearen Verhalten bei zunehmender Spaltdicke ist auf die einsetzende Konvektion zurückzuführen. Für die Rechnung wurde ein Temperaturgefälle von 15 °C angenommen, bei einer mittleren Temperatur von 10 °C .

le erfolgen, wo der konvektive Übergang schon wirkungsvoll unterdrückt ist. Dadurch wird die Kette der Wärmewiderstände am wirkungsvollsten unterbrochen. Die Temperaturstrahlungsverspiegelung sollte deshalb hohlraumseitig erfolgen, wo ja der konvektive Übergang durch optimale Wahl des Scheibenabstandes unterdrückt ist. Üblicherweise wird sie dabei an der innersten Scheibe der Verglasung angebracht. Der Einfluss auf den k -Wert, der sich durch die Kombination der beiden Massnahmen (Schwergase und IR-Verspiegelung) ergibt, soll in Abb. 3.7 illustriert werden.

Deutlich sichtbar wird darin, dass die *IR-Verspiegelung* eine äusserst effiziente Massnahme zur Absenkung des k -Wertes darstellt, indem der Strahlungsanteil an den Wärmedurchgangskoeffizienten auf $\Lambda_R = 0,5\text{ W/m}^2\text{K}$ zusammenfällt. Die Leitungs-Konvektionsverluste Λ_C liegen jetzt je nach Füllgas um einen Faktor 2 bis 3 höher als die Strahlungsverluste. Dadurch reagiert der k -Wert auf den Einsatz von Schwergasen weit sensibler als bei Verglasungen ohne IR-Verspiegelung.

Im weiteren gibt Abb. 3.7 auch Aufschluss über das Verhalten des k -Wertes mit dem *Scheibenabstand* d . Bei $d = 0$ befinden sich die Scheiben in direktem Wärmekontakt, wo-

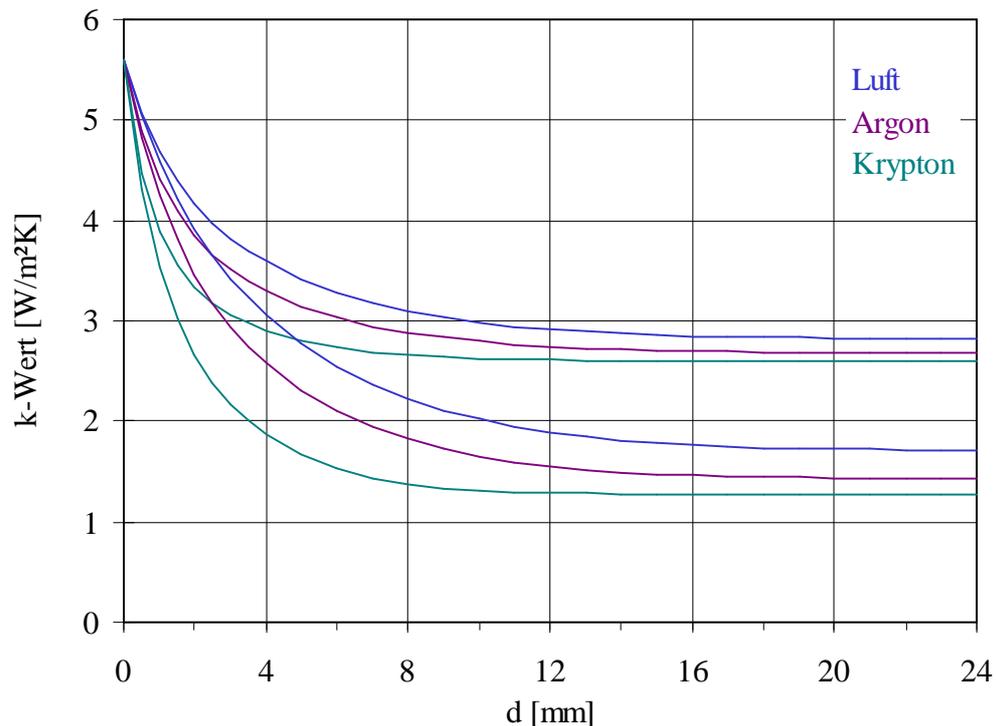


Abb. 3.7 Verhalten des k-Wertes einer Doppelverglasung in Funktion des Scheibenabstandes für die Füllgase Luft, Argon und Krypton. Die obere Kurvenschar ergibt sich bei Verwendung von Normalglas ($\epsilon = 0,84$), die untere durch Verwendung einer IR-verspiegelten Scheibe ($\epsilon_1 = 0,84$, $\epsilon_2 = 0,10$).

durch in allen Fällen ein k-Wert von $5,6 \text{ W/m}^2\text{K}$ resultiert, der sich im wesentlichen aus den Wärmeübergängen der Randschichten ergibt. Von diesem Punkt aus fallen die Kurven mit dem Scheibenabstand je nach wärmetechnischer Massnahme mehr oder weniger rasch ab, um asymptotisch gegen den optimalen k-Wert zu laufen, wo aus einer Vergrößerung von d keine Verbesserung mehr resultiert. Je früher die Konvektion einsetzt, desto rascher wird der Punkt erreicht, wo eine Vergrößerung der Gasschicht keine Verbesserung mehr erbringt. Insbesondere bei Krypton beobachtet man ein frühes Einsetzen der Konvektion, so dass dort schon ab etwa 8 mm keine wesentliche Verbesserung des k-Wertes mehr eintritt. Je nach Gasart ist ab etwa 50 mm durch starke Konvektion sogar wieder eine Verschlechterung des k-Wertes zu beobachten.

IR-Verspiegelungen zur Reduktion der Wärmeübertragung durch langwellige Wärmestrahlung ergeben auch eine etwas reduzierte Transmission der Solarstrahlung und des Lichtes. Moderne IR-verspiegelte Wärmeschutzgläser (z.B. Silber oder Indiumoxid) weisen jedoch trotzdem einen guten Gesamtenergiedurchlassgrad auf und sind ziemlich farbneutral.

Als naheliegende weitere Massnahme kann die *Vervielfachung der Glasscheiben* zu Drei- und Mehrfachverglasungen gelten. Durch jede weitere Schicht wird so die Kette der

Wärmewiderstände verlängert, indem in jedem zusätzlich geschaffenen Hohlraum die oben beschriebenen wärmetechnischen Massnahmen zur Wirkung kommen. Gleichzeitig wird jedoch mit jeder zusätzlichen Schicht die solare und die visuelle Transmission vermindert, so dass diese Massnahme nicht beliebig fortgesetzt werden kann.

Sowohl die IR-Verspiegelung als auch die Vervielfachung der Schichtzahl sind Massnahmen, bei denen eine Verbesserung des k-Wertes durch eine gewisse Verschlechterung der solaren Transmissionseigenschaften und damit des g-Wertes erkaufte werden muss. Für die Energiebilanz des Fensters sind gemäss Abschnitt 3.2 jedoch beide Kenngrössen massgebend. IR-Verspiegelung und Vervielfachung der Scheibenzahl sind also bei gegebenen klimatischen Bedingungen durchaus Massnahmen, die die Energiebilanz des Fensters verbessern, indem Strahlungsgewinne nicht in demselben Masse verringert werden, wie die Verluste durch Wärmetransport.

	Konfiguration	Gasart	k	g	q _i	τ _S	τ _L
1	4/16/4	Luft	2,79	0,76	0,055	0,71	0,815
2	4/16/4	Argon	2,64	0,77	0,055	0,71	0,815
3	4/9/4	Krypton	2,59	0,77	0,056	0,71	0,815
4	4/16/4*	Luft	1,75	0,62	0,11	0,51	0,75
5	4/16/4*	Argon	1,46	0,63	0,12	0,51	0,75
6	4/9/4*	Krypton	1,34	0,63	0,12	0,51	0,75
7	4/12/4/12/4	Luft	1,90	0,68	0,082	0,60	0,74
8	4/12/4/12/4	Argon	1,76	0,68	0,083	0,60	0,74
9	4/9/4/9/4	Krypton	1,66	0,69	0,083	0,60	0,74
10	4/12/4/12/4*	Luft	1,38	0,56	0,13	0,43	0,69
11	4/12/4/12/4*	Argon	1,16	0,56	0,13	0,43	0,69
12	4/9/4/9/4*	Krypton	1,01	0,56	0,13	0,43	0,69
13	4/12/4*/12/4*	Luft	1,08	0,48	0,16	0,32	0,64
14	4/12/4*/12/4*	Argon	0,86	0,48	0,16	0,32	0,64
15	4/9/4*/9/4*	Krypton	0,71	0,48	0,16	0,32	0,64

Tab. 3.1 Kenngrössen von Zwei- und Dreifachverglasungen berechnet mit den in den Abschnitten 3.3 und 3.4 dargestellten Verfahren. Die Aussen- bzw. Innentemperaturen betragen 0 °C bzw. 20 °C. Die Wärmeübergangszahlen wurden nach DIN-Norm 4108 mit $\alpha_i = 8 \text{ W/m}^2\text{K}$ und $\alpha_a = 23 \text{ W/m}^2\text{K}$ festgesetzt. IR-verspiegelte Scheiben ($\epsilon = 0,10$) werden mit einem * bezeichnet.

Der Einfluss der wärmetechnischen Massnahmen auf die Kenngrössen von Fenstern soll mit Tabelle 3.1 illustriert werden. Neben Scheibenzahl werden darin auch Gasart und IR-Beschichtungen variiert. Für IR-verspiegelte Oberflächen wurde eine SILVERSTAR-Beschichtung ($\epsilon = 0,10$) angenommen. Für Normalglas ohne Beschichtung wurde ein Emissionsvermögen von $\epsilon = 0,84$ angenommen. Als Berechnungsgrundlage für die optischen Daten dienten Messwerte aus [Fur 88] für senkrechte Einfallrichtung der Strahlung.

Für fünf ausgewählte Verglasungstypen soll hier noch der Wärmeverlust Q in Abhängigkeit von der solaren Einstrahlung I dargestellt werden (Abb. 3.8). Zur Berechnung wurde das in Abschnitt 3.4 behandelte Verfahren nach Rubin verwendet. Obwohl damit der Einfluss der einzelnen Temperaturniveaus genau berücksichtigt wird, sind kaum Abweichungen vom linearen Verlauf gemäss dem Ausdruck (3.4) $Q = k \cdot \Delta T - g \cdot I$ festzustellen. Der Schwellenwert, ab dem ein Wärmegewinn (Q negativ) resultiert, kann daher mit:

$$(3.86) \quad I = \frac{k}{g} \cdot \Delta T \quad ,$$

berechnet werden. So weisen Verglasungen mit hohen g/k -Werten schon bei geringer Einstrahlung einen Wärmegewinn auf. Ein entsprechendes Verhalten der einzelnen Verglasungstypen ist in Abb. 3.8 zu beobachten:

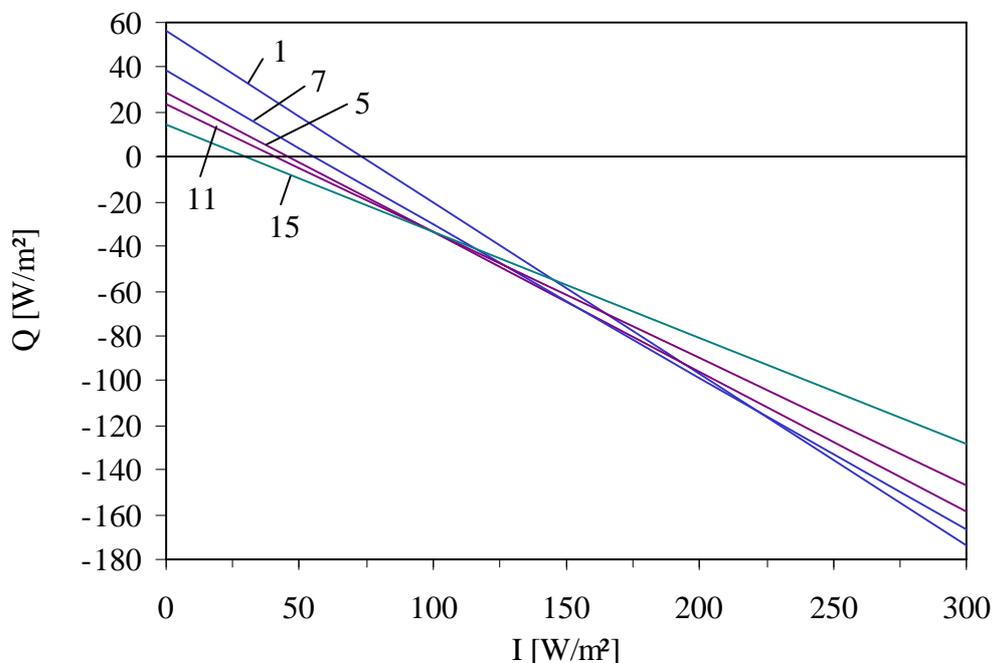


Abb. 3.8 Wärmeverlust Q in Abhängigkeit von der solaren Einstrahlung I bei einer Temperaturdifferenz von 20 °C zwischen Innen- und Aussenraum. Dargestellt sind die fünf Verglasungstypen 1, 5, 7, 11, 15 aus Tabelle 3.1.

Die Doppelverglasung aus normalem Klarglas (1) weist den höchsten Schwellenwert auf und erlaubt nur in sonnigen Lagen eine bessere Nutzung der Solarenergie. Am anderen Ende kann demgegenüber die Dreifachverglasung mit Kryptonfüllung und zweifacher IR-Verspiegelung (15) als eigentliches Energiesparfenster gelten, das bei niedrigem Schwellenwert selbst an Standorten mangelnder Sonneneinstrahlung einen Energiegewinn aufweist. Für ein solches Energiesparfenster wurde neuerdings ein Randverbund entwickelt, der wie eine Zweifachverglasung mit bloss zwei Dichtflächen auskommt [Fri 89b].

Damit sind die konventionellen Massnahmen und ihre Auswirkungen auf das energetische Verhalten besprochen. Als weiterführende Massnahmen zur Erzielung hochisolierender Fenster stehen noch folgende Möglichkeiten zur Verfügung:

- ❑ In einer Doppelverglasung werden zwei bis drei *Kunststoffolien* mit farbneutraler IR-Beschichtung aufgespannt. Solche Folien sind leichter und transparenter als Glas. Neben der Absenkung des Strahlungsbeitrages wird durch die Unterteilung des Hohlraumes auch die Konvektion unterdrückt.
- ❑ Wie schon oben erwähnt, wird in einer Zweifachverglasung durch die IR-Verspiegelung der Strahlungsanteil so weit reduziert, dass der Leitungs-Konvektionsanteil an den Wärmetransport dominiert. Es liegt deshalb nahe, den Scheibenzwischenraum zu *evakuieren*, um diesen Konvektionsbeitrag zu eliminieren. Da die Glasscheiben den Aussen- druck nicht tragen können, sind jedoch in gewissen Abständen Distanzhalter notwendig, die die Sicht beeinträchtigen und als Wärmebrücken wirken. Ausserdem ergibt sich die Schwierigkeit, den erforderlichen Gasdruck über längere Zeit aufrechtzuerhalten. Solchen evakuierten Fenstersystemen ist Abschnitt 4 gewidmet.
- ❑ In Abschnitt 2 wurde *Aerogel* schon als transparenter Wärmeisolator vorgestellt. Auch die Möglichkeit der Verwendung von Aerogel in Fensterelementen wurde dort besprochen. In Abschnitt 5 sollen nun auf Grund von Messungen die Kenndaten festgelegt werden, die einen Vergleich mit konventionellen Lösungen ermöglichen.

4 EVAKUIERTE FENSTERSYSTEME

4.1 Der Wärmetransport in evakuierten Fenstersystemen

Der Wärmetransport zwischen den beiden Scheiben einer Zweifachverglasung erfolgt über Strahlung und Leitung bzw. Konvektion. Das hohlraumseitige Aufbringen einer Temperaturstrahlungsverspiegelung erweist sich als eine sehr wirkungsvolle Massnahme zur Reduktion des Strahlungstransportes. In einer solchen IR-verspiegelten Verglasung beträgt der Wärmeverlust durch Leitung bzw. Konvektion je nach Füllgas das zwei- bis dreifache des Strahlungsanteiles. Wird der Scheibenzwischenraum evakuiert, so kann dieser durch das Füllgas beigesteuerte Beitrag zum Wärmetransport vollständig unterdrückt werden, wodurch sich ein theoretischer k-Wert um 0,5 W/m²K ergibt.

Diese so elegant anmutende Massnahme ist leider mit einigen fertigungstechnischen Schwierigkeiten verbunden. Zum einen ist es schwierig, einen Randverbund herzustellen, der es erlaubt, den erforderlichen Unterdruck über längere Zeit aufrechtzuerhalten. Zum anderen ist eine bloss am Rand abgestützte Glasscheibe nicht in der Lage, den Luftdruck zu tragen, so dass in gewissen Abständen Distanzhalter eingebaut werden müssen. Diese Distanzhalter beeinträchtigen die Durchsicht und wirken als Wärmebrücken, womit ein Teil der wärmetechnischen Vorteile wieder zunichte geht.

Der Wärmetransport erfolgt jetzt über die drei parallel geschalteten Kanäle Strahlung, Konvektion und Distanzhalter. Wenn f der Flächenanteil der Distanzhalter ist, kann deshalb für den Wärmedurchgangskoeffizienten einer evakuierbaren Zweifachverglasung geschrieben werden:

$$(4.1) \quad \Lambda = \left(\frac{2}{\Lambda_{\text{Glas}}} + \frac{1}{(1-f) \cdot [\Lambda_{\text{R}} + \Lambda_{\text{C}}] + f \cdot \Lambda_{\text{D}}} \right)^{-1} .$$

Für die Wärmeverlustkoeffizienten Λ_{R} (Strahlung), Λ_{C} (Leitung, Konvektion) können die Ausdrücke (3.17) und (3.25) gesetzt werden. Zur Berücksichtigung der Konvektion enthält Λ_{C} gemäss (3.31) als zusätzlichen Faktor die Nusseltzahl Nu . Im Wärmeverlustkoeffizienten für die Distanzhalter Λ_{D} sind auch zwei Wärmekontaktwiderstände eingeschlossen, die erfahrungsgemäss etwa 0,003 m²K/W betragen.

Wird der Druck im Scheibenzwischenraum abgesenkt, so verschwindet zunächst die Konvektion und man beobachtet den ersten Abfall des Wärmeflusses. Die Nusseltzahl strebt so gegen eins und wir gelangen in das Gebiet, wo die Wärmeleitfähigkeit einer ruhenden

Gasschicht genutzt wird. Wie in Abschnitt 3.3.1.2 gezeigt wurde, ist diese Wärmeleitfähigkeit unabhängig vom Gasdruck, bis durch ein weiteres starkes Absenken des Druckes die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle in den Bereich des Scheibenabstandes zu liegen kommt. Erst jetzt beobachtet man einen weiteren Abfall der (scheinbaren) Wärmeleitfähigkeit, bei dem schliesslich der Beitrag des Gases zum Wärmetransport verschwindet.

Bei kleinen Scheibenabständen setzt dieser zweite Abfall wohl früher ein. Daraus folgt aber *nicht*, dass bei kleinen Scheibenabständen weniger stark evakuiert werden muss, um einen gegebenen Wärmeverlust zu erreichen. Es folgt nämlich aus (3.25), dass bei festem Gasdruck der Beitrag des Gases zum Wärmetransport mit sinkendem Scheibenabstand ansteigt.

4.2 Messungen an evakuierbaren Fenstersystemen

Die in Abschnitt 4.1 dargestellte Theorie wurde experimentell verifiziert. Dazu wurden Fensterelemente mit den Massen 500×500 mm hergestellt und deren Wärmedurchgangskoeffizient mit einer Zweiplattenapparatur [Reb 87] gemessen. Der daraus berechnete k-Wert basiert auf den Wärmeübergangszahlen nach der DIN-Norm 4108. Der Randverbund der Prüflinge wurde verklebt (Araldit). Dadurch ergab sich eine gewisse Leckrate, die durch permanenten Anschluss einer Drehschieberpumpe ausgeglichen werden musste. Die Druckregelung erfolgte über ein Nadelventil. Die mittlere Temperatur betrug 25 °C bei einem Temperaturgefälle von 10 °C . Auf Grund der verwendeten Glasscheiben (Floatglas 4 mm) wurde für die Distanzhalter ein Rastermass von 62×62 mm gewählt. Nach der Plattentheorie [Dub 66] ergeben sich so noch Zugspannungen, die unterhalb der Bruchspannung für Glas liegen.

Die Messungen erfolgten an zwei Fensterelementen mit 0,32 mm Scheibenabstand (Abb. 4.1) und einem solchen mit 50 mm Scheibenabstand (Abb. 4.2). Von den Fensterelementen mit kleinem Scheibenabstand enthielt eines davon eine Glasscheibe mit einer SILVERSTAR-Beschichtung ($\epsilon_2 = 0,10$). Als Abstandshalter wurden quadratische (5×5 mm) Folienstückchen aus Zelluloseacetat ($\lambda = 0,22\text{ W/mK}$) verwendet. Das Fensterelement mit grossem Scheibenabstand enthielt keine IR-Verspiegelung ($\epsilon_1 = \epsilon_2 = 0,84$). Als Distanzhalter wurden dort zylindrische Plexiglasstäbchen ($\lambda = 0,22\text{ W/mK}$) mit einem Durchmesser von 6 mm verwendet. Sie sind damit in der Lage, die auftretende Druckkraft von 390 N ohne Knickung zu überstehen.

Die Abbildungen 4.1 und 4.2 zeigen, dass sich das gemessene Verhalten gut mit dem beschriebenen Modell darstellen lässt:

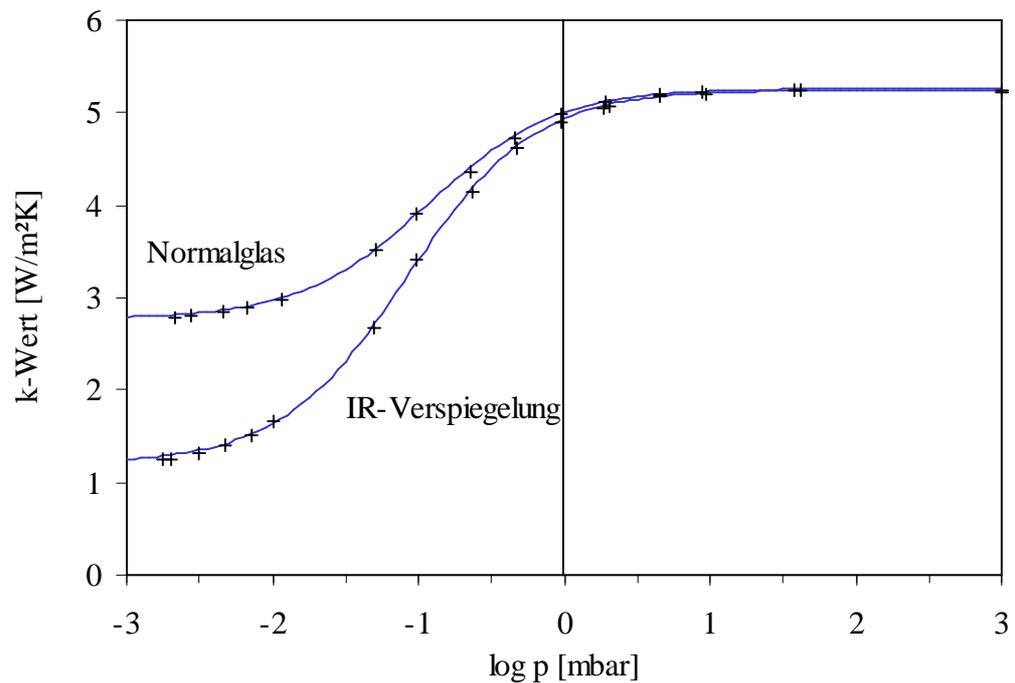


Abb. 4.1 Gemessener und berechneter k-Wert einer Verglasung mit 0,32 mm Scheibenabstand als Funktion des Druckes.

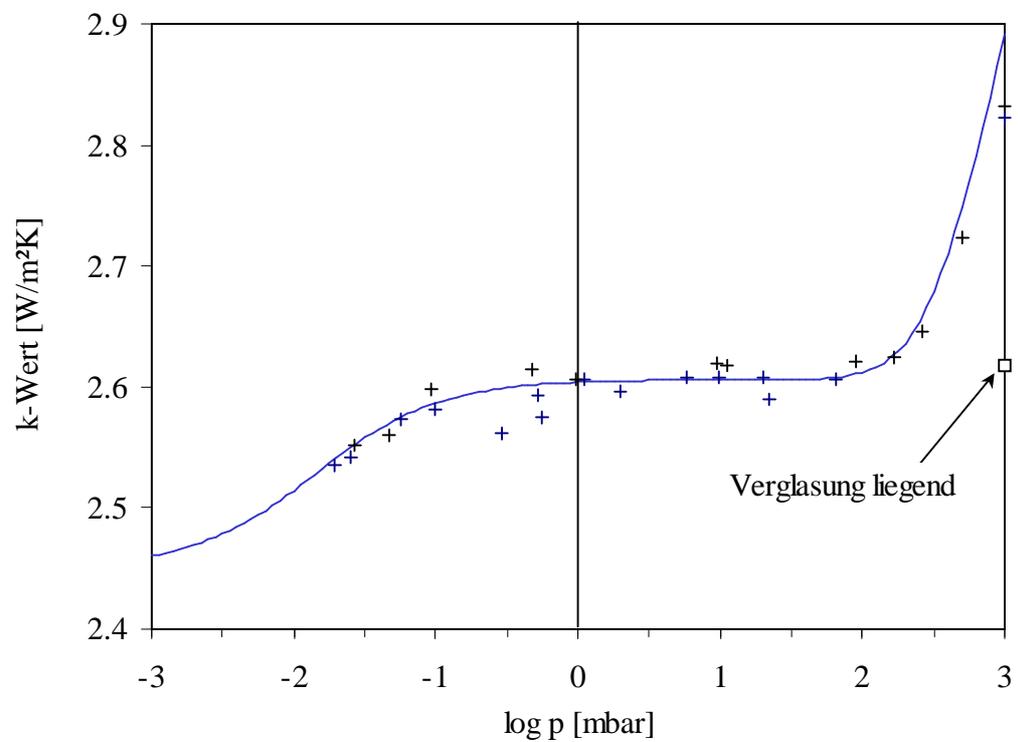


Abb. 4.2 Gemessener und berechneter k-Wert einer Doppelverglasung aus Normalglas mit 50 mm Scheibenabstand als Funktion des Druckes.

4.3 Schlussfolgerungen

Es gelingt mit dem in Abschnitt 4.1 dargestellten Modell das gemessene Verhalten des k-Wertes mit dem Scheibeninnendruck in konsistenter Weise darzustellen, sofern in (3.25) ein Akkomodationskoeffizient $a_1 = a_2 = 0,6$ angenommen wird. Das Verhalten des k-Wertes kann hiernach zusammenfassend in Abb. 4.3 dargestellt werden. Dort ist insbesondere auch der Einfluss des Scheibenabstandes verdeutlicht. Bei grösserem Scheibenabstand ist nahe des Umgebungsdruckes ein erhöhter k-Wert durch Konvektion festzustellen. Es schliesst ein Bereich an, wo der k-Wert nahezu unabhängig vom Scheibeninnendruck ist. Wird weiter evakuiert, so fällt schliesslich der k-Wert auf einen durch die Strahlung und die Distanzhalter gegebenen Beitrag ab. Es zeigt sich weiter, dass bei festem Druck die Verglasungsvariante mit grösserem Scheibenabstand einen besseren k-Wert aufweist. Um denselben k-Wert zu erreichen, müssten Fenster mit geringerem Scheibenabstand auf einen tieferen Gasdruck gebracht werden:

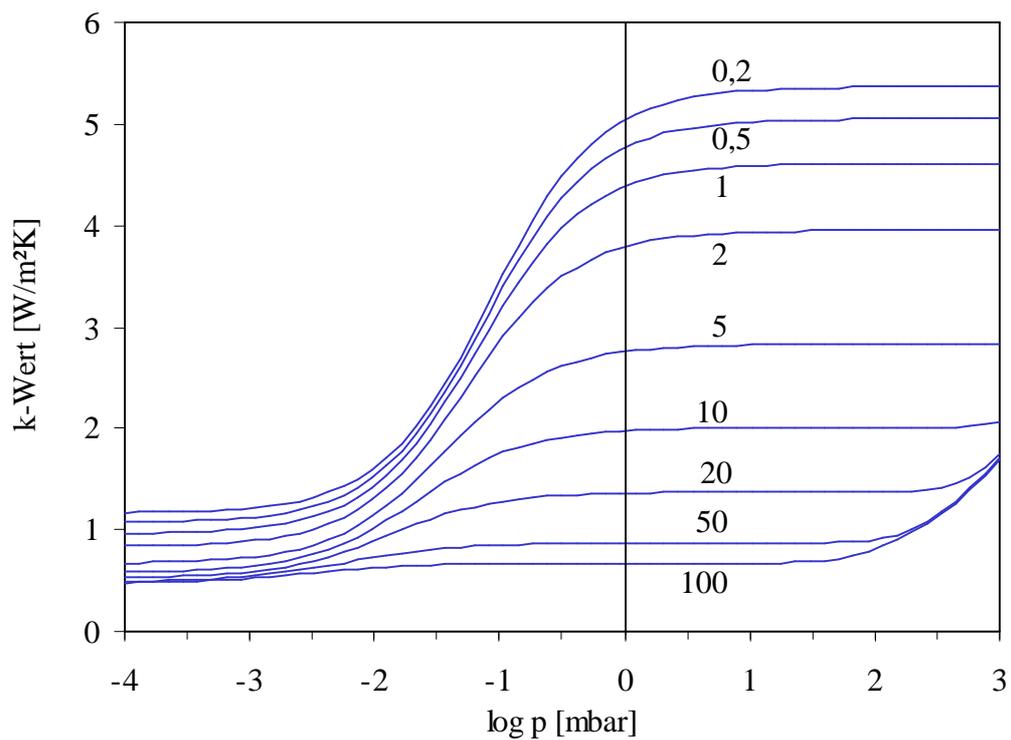


Abb. 4.3 Berechneter k-Wert in Funktion des Druckes p für die Scheibenabstände 0,2 / 0,5 / 1 / 2 / 5 / 10 / 20 / 50 / 100 mm bei einer mittleren Temperatur von $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ und einem Temperaturgefälle über den Glasscheiben von $15\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Immerhin können bei geringen Scheibenabständen sehr kleine und unauffällige Abstützelemente verwendet werden, deren Beitrag als Wärmebrücken zudem gering ist. Damit sind für kleine Scheibenabstände gegenüber Abb 4.3 doch etwas geringere k-Werte zu er-

warten, indem man auch dort näher an die durch die Strahlung gegebene Grenze von $0,5 \text{ W/m}^2\text{K}$ kommen könnte.

Bei sehr grossen Scheibenabständen ($\geq 5 \text{ cm}$) ist die durch Absenkung des Gasdruckes erzielbare Reduktion des k-Wertes vorwiegend auf die Vermeidung der Konvektion zurückzuführen. Dazu reichen vergleichsweise bescheidene Vakua unterhalb 100 mbar aus. Die Anforderungen an die Randverbundsysteme sind damit weniger hoch.

Verglasungen mit kleinen Scheibenabständen reagieren weit kritischer auf Lecks. Gegen Verglasungen mit grossem Scheibenabstand sprechen hingegen die grossen Volumina (Implosionsgefahr) und die massiven Distanzhalter, die die freie Durchsicht beeinträchtigen. Für die erforderlichen Enddrucke unterhalb 10^{-3} mbar reichen organische Dichtmittel nicht mehr aus. Es muss an eine Verschmelzung der beiden Glasscheiben am Rand gedacht werden. In [Jor 84] werden dahingehende Versuche mit einem Laserstrahl an Verglasungen mit geringem Scheibenabstand beschrieben. Als fertigungstechnisches Problem sind die dabei auftretenden Wärmespannungen zu berücksichtigen. Es kann gemildert werden, indem die zu dichtenden Scheiben vorgewärmt werden. Es muss jedoch darauf geachtet werden, dass eine hitzebeständige IR-Beschichtung verwendet wird. Ein Evakuieren von Zweifachverglasungen kann nur als zusätzliche Massnahme für Fenster gesehen werden, deren Strahlungsanteil schon durch eine IR-Verspiegelung reduziert worden ist: Es hat nämlich keinen Sinn, ein Loch zu stopfen und daneben ein noch grösseres offen zu lassen. Bei der Aufrechterhaltung des Druckes könnte die Eindiffusion leichter Gase (Helium) Schwierigkeiten bereiten.

Die Massnahme des Evakuierens hat den Vorteil, dass dadurch das solare Transmissionsvermögen gegenüber einer konventionellen Zweischeibenverglasung nicht vermindert wird. Könnten die schwierigen Probleme der Fertigung und der Anwendung gelöst werden, so erhielte man deshalb ein hochisolierendes Fensterelement bei gleichzeitig hohem g-Wert.

5 AEROGELFENSTER

5.1 Wärmetechnisches Verhalten

5.1.1 Allgemeine Betrachtungen zum Strahlungstransport

Der Wärmetransport durch (thermische) Strahlung in einem absorbierenden, optisch dicken Medium kann wie ein Diffusionsprozess behandelt werden: So lange die mittlere freie Weglänge der Photonen viel kleiner ist als der Abstand d der Grenzflächen, kann die Strahlungsausbreitung als ein lokales Phänomen betrachtet werden [Rei 85]. In Analogie zur Wärmeleitfähigkeit durch Leitung λ_C kann in diesem Fall eine Strahlungswärmeleitfähigkeit λ_R eingeführt werden. Die gesamte Wärmeleitfähigkeit ergibt sich dann als Summe:

$$(5.1) \quad \lambda = \lambda_C + \lambda_R \quad ,$$

worin nach dem Konzept der Strahlungsdiffusion λ_R gegeben ist durch [Sie 80]:

$$(5.2) \quad \lambda_R = \frac{16}{3 \cdot \tau_0} \cdot n^2 \cdot \sigma \cdot T_R^3 \cdot d \quad , \quad \tau_0 = E \cdot d \quad .$$

Darin ist τ_0 die optische Dicke, E der Extinktionskoeffizient und n der Brechindex des Mediums ($n \cong 1$ für Aerogel). T_R ist die in (3.17) definierte Strahlungstemperatur.

Nun besitzt Aerogel bei Wellenlängen zwischen 3 und 5 μm ein "Strahlungsloch" (Abb. 5.1). In diesem Gebiet ist der Extinktionskoeffizient E so klein, dass die optische Dicke $\tau_0 = E \cdot d$ Werte um eins annimmt. Der Wärmetransport kann jetzt nicht mehr als lokales Phänomen betrachtet werden, indem auch weiter entfernte Schichten über Strahlung wechselwirken können. So beeinflusst nun auch die Emissivität ε der Ränder den Wärmetransport. Im Falle reiner Strahlung ($\lambda_C = 0$) liefert eine erweiterte Betrachtung für die scheinbare Wärmeleitfähigkeit [Sie 80]:

$$(5.3) \quad \lambda_R = \frac{4 \sigma \cdot n^2}{\frac{2}{\varepsilon} - 1 + \frac{3}{4} \cdot \tau_0} \cdot T_R^3 \cdot d \quad .$$

Diese Beziehung liefert korrekte Resultate in den Grenzfällen: Für grosse optische Dicken $\tau_0 \gg 1$ erhält man die Diffusionslösung (5.2), für verschwindende optische Dicke $\tau_0 = 0$ erhält man den Strahlungstransport zwischen zwei ebenen Platten, wie er schon in dem

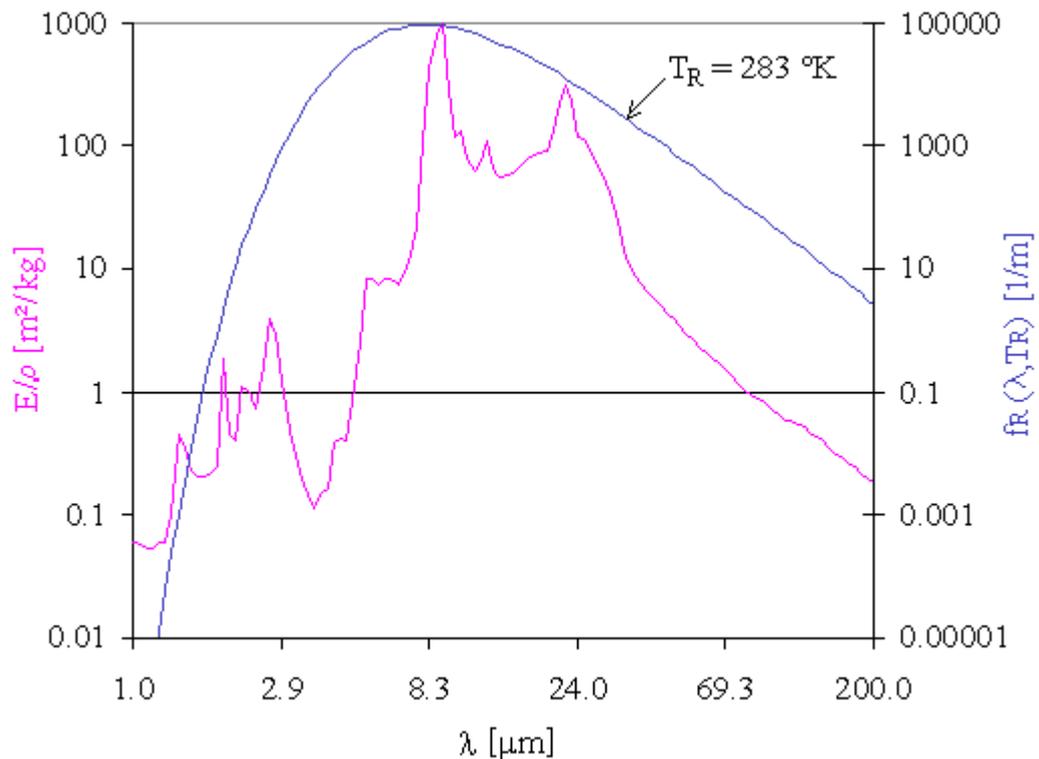


Abb. 5.1 Gemessener spezifischer Extinktionskoeffizient E/ρ [m^2/kg] von Aerogel nach [Cap 85]. Ebenfalls eingetragen ist das differentielle Strahlungsspektrum [Roseland Gewichtsfunktion $f_R(\lambda, T_R)$] bei der typischen Fenstertemperatur von 10°C ($T_R = 283 \text{ °K}$). Im Bereich der Wärmestrahlung ist die Extinktion auf Absorption und nicht auf Streuung zurückzuführen, da die Porendurchmesser sehr viel kleiner sind als die IR-Wellenlängen.

Ausdruck (3.17) hergeleitet wurde. Im Zwischengebiet ($\tau_0 \sim 1$) bleibt der Fehler von (5.3) unterhalb 3,5% [Sie 80].

In Aerogel führen nun die unterschiedlichen Reichweiten der beiden Wärmetransportmechanismen zu einer Kopplung von Strahlung und Leitung: In jeder Teilschicht wird ein gewisser Anteil der Strahlung absorbiert und entsprechend der lokalen Temperatur reemittiert. Dabei kommuniziert jede Schicht je nach freier Weglänge der Photonen mehr oder weniger stark sowohl mit den Rändern, als auch mit den anderen Schichten des Systems. Gleichzeitig wird entsprechend dem lokalen Temperaturgradienten ein Teil der Wärme durch Leitung von Schicht zu Schicht transportiert. Leitung und Strahlung hängen somit an jeder Stelle voneinander ab. Auf Grund der Kopplung zwischen den beiden Wärmetransportmechanismen liefert einfache Superposition gemäss (5.1) falsche Resultate.

Im Gleichgewicht resultiert eine nichtlineare Temperaturverteilung und eine gewisse Anhebung des totalen Wärmetransportes gegenüber einem ungekoppelten System. Dieser Gleichgewichtszustand wird durch eine komplizierte Integrodifferentialgleichung beschrie-

ben, die man erhält, wenn für jede Teilschicht eine Energiebilanz aufgestellt wird. Für ein nichtgraues Medium wie Aerogel, wo also die optische Dicke von der Wellenlänge abhängt, ist diese Gleichung nur numerisch und mit grossem Aufwand lösbar. Im weiteren wird daher eine einfachere halbempirische Lösung nach [Cap 85] herangezogen:

5.1.2 Konzept des effektiven Emissionsvermögens

In [Cap 85] wurde eine halbempirische Prozedur entwickelt, bei der die formale Einfachheit von (5.1) und (5.3) beibehalten werden können. Dazu wurde ein effektives Emissionsvermögen ε^* eingeführt, das von der optischen Dicke τ_0 und dem Strahlungs-Leitungsparameter:

$$(5.4) \quad N_1 = \lambda_C \cdot \frac{E}{4 \sigma \cdot T_R^3} \quad ,$$

abhängt. Damit wird der Randschichteffekt berücksichtigt, der sich qualitativ folgendermassen beschreiben lässt:

Je tiefer das Emissionsvermögen der Ränder für eine gegebene optische Tiefe τ_0 ist, desto mehr Strahlung wird in den Randschichten des Mediums produziert verglichen mit der Emission des Randes selbst. Vom Rand selbst wird weniger Strahlung geliefert, was durch erhöhte Festkörperleitung kompensiert wird: Es baut sich daher in der Randzone ein steiler Temperaturgradient auf, der zu einer erhöhten Wärmeleitung vom Rand zur Randschicht hin führt und durch den schliesslich der Wärmetransport in jedem Querschnitt konstant bleibt. In [Cap 85] wird für das (erhöhte!) effektive Emissionsvermögen folgender Ausdruck angegeben:

$$(5.5) \quad \varepsilon^* = 1 - (1 - \varepsilon) \cdot \exp\left(-\frac{N_1}{2 N_1 + 0,04} \cdot \arctg\left(1 + \frac{0,02}{N_1}\right) \cdot \tau_0\right) \quad .$$

Eine Verallgemeinerung von (5.3) auf nichtgraue Medien wie Aerogel, wo der Extinktionskoeffizient von der Wellenlänge abhängt, ist weiter möglich mit:

$$(5.6) \quad \lambda = \lambda_C + \lambda_R \quad , \quad \lambda_R = 4 \sigma \cdot n^2 \cdot T_R^3 \cdot d \cdot \int_0^\infty \frac{f_R(\Lambda, T_R)}{\varepsilon^*(\Lambda) - 1 + \frac{3}{4} \cdot E(\Lambda) \cdot d} \cdot d\Lambda \quad .$$

Darin ist $f_R(\Lambda, T) = \partial S(\Lambda, T) / \partial S(T)$ die in Abb. 3.1 dargestellte Rosseland Gewichtsfunktion, die sich aus dem Planck'schen Strahlungsspektrum $S(\Lambda, T)$ ergibt. Zur Berechnung von N_1 (5.4) wird jetzt ein mittlerer Extinktionskoeffizient $\langle E \rangle$ eingesetzt, den man aus einem Vergleich der (dimensionslosen) Strahlungsflüsse eines grauen und eines nichtgrauen Mediums mit schwarzen Rändern erhält:

$$(5.7) \quad \frac{1}{1 + \frac{3}{4} \cdot \langle E \rangle \cdot d} = \int_0^{\infty} \frac{f_R(\Lambda, T_R)}{1 + \frac{3}{4} \cdot E(\Lambda) \cdot d} \cdot d\Lambda$$

5.1.3 Experimentelle Bestimmung der Beiträge zum Wärmetransport

Zur Bestimmung der einzelnen Beiträge zum Wärmetransport wird zunächst der Wärmefluss durch die Aerogelprobe gemessen. Daraus ergibt sich die totale effektive Wärmeleitfähigkeit λ , die sich gemäss (5.1) aus einem *Leitungs-* und einem *Strahlungsanteil* zusammensetzt. Bei bekanntem Verlauf des Extinktionskoeffizienten (Abb. 5.1) kann anschliessend mit (5.6) der Strahlungsanteil λ_R berechnet werden. Die Differenz zur totalen Wärmeleitfähigkeit kann auf den Leitungsbeitrag λ_C zurückgeführt werden.

5.1.3.1 Der Strahlungsbeitrag

Der Strahlungsbeitrag λ_R gemäss (5.6) hängt über N_1 selbst vom Leitungsanteil λ_C ab. Die Aufteilung der gemessenen totalen effektiven Wärmeleitfähigkeit in einen Strahlungs- und einen Leitungsanteil muss daher iterativ erfolgen: Von einem angenommenen Leitungsanteil λ_C aus wird der Strahlungsanteil λ_R berechnet. Dies wird so lange wiederholt, bis die Summe der gemessenen effektiven Wärmeleitfähigkeit λ entspricht.

Der spezifische Extinktionskoeffizient von Aerogel hängt im Bereich des Strahlungsloches (3 - 5 μm) stark vom Wassergehalt ab [Fri 86a]. Wasser absorbiert gerade IR-Strahlung im Bereich von 3 μm . Bei den bei Fenstern auftretenden Temperaturen liegt jedoch das thermische Spektrum zu einem grossen Teil ausserhalb des Strahlungsloches (Abb. 3.1), so dass der Wassergehalt den Strahlungsanteil zum Wärmetransport λ_R nur in geringem Masse beeinflusst.

5.1.3.2 Der Leitungsbeitrag

Der Wärmetransport durch Leitung kann selbst in zwei Beiträge aufgeteilt werden. Er erfolgt zum einen durch das feste *Gerüst*, zum anderen durch das *Porengas*. Die beiden Anteile lassen sich durch die entsprechenden Wärmeleitfähigkeiten definieren [Rub 87]:

$$(5.8) \quad \lambda_C = \lambda_S + \lambda_G \quad .$$

Die Wärmeleitfähigkeit des festen Gerüsts λ_S (solid) wird festgelegt, indem zunächst die effektive Wärmeleitfähigkeit des *evakuierten* Aerogels gemessen wird und anschliessend der mit (5.6) berechnete Strahlungsanteil abgezogen wird. Für die Wärmeleitfähigkeit des Gases λ_G im porösen Gerüst kann entsprechend (3.25) die Knudsenformel geschrieben werden [Kag 69]:

$$(5.9) \quad \lambda_G = \frac{\lambda_G^0}{1 + 2 \cdot \left(\frac{2}{a} - 1 \right) \cdot \frac{\langle l \rangle}{d}} \quad ,$$

wobei aber jetzt d die Bedeutung eines effektiven Porendurchmessers hat. In Aerogel gelangt schon bei Normaldruck die mittlere freie Weglänge $\langle l \rangle$ in den Bereich des effektiven Porendurchmessers, so dass dort λ_G gegenüber der Wärmeleitfähigkeit des Gases ohne Randeffekte λ_G^0 wesentlich reduziert erscheint. Zudem genügt ein verhältnismässig geringes Absenken des Druckes (10 - 100 mbar), um die Leitung durch das Porengas vollständig zum Verschwinden zu bringen.

In Anlehnung an den für evakuierbare Zweischeibenverglasungen gefundenen Akkomodationskoeffizienten wurde auch hier $a = 0,6$ gesetzt. Um den gemessenen Verlauf der effektiven Wärmeleitfähigkeit mit dem Druck richtig wiederzugeben (Abb. 5.2), musste damit in (5.9) für den effektiven Porendurchmesser $d = 80$ nm gesetzt werden. Von den tatsächlichen Porengrössen her gesehen ist dies ein vernünftiger Wert.

Abb. 5.2 zeigt nun zusammenfassend das Verhalten der einzelnen Beiträge zum Wärmetransport in Abhängigkeit des Gasdruckes. Die gesamte effektive Wärmeleitfähigkeit wird danach dominiert durch den Gerüstleitungsanteil (8 mW/mK). Der Anteil der Gasleitung beträgt hier bei Normaldruck bloss noch 5,3 mW/mK für Luft und 3,2 mW/mK für Argon. Die Beiträge mögen verglichen werden mit der Wärmeleitfähigkeit einer ruhenden Gasschicht. Im Falle von Luft beträgt diese 26 mW/mK, im Falle von Argon 17 mW/mK:

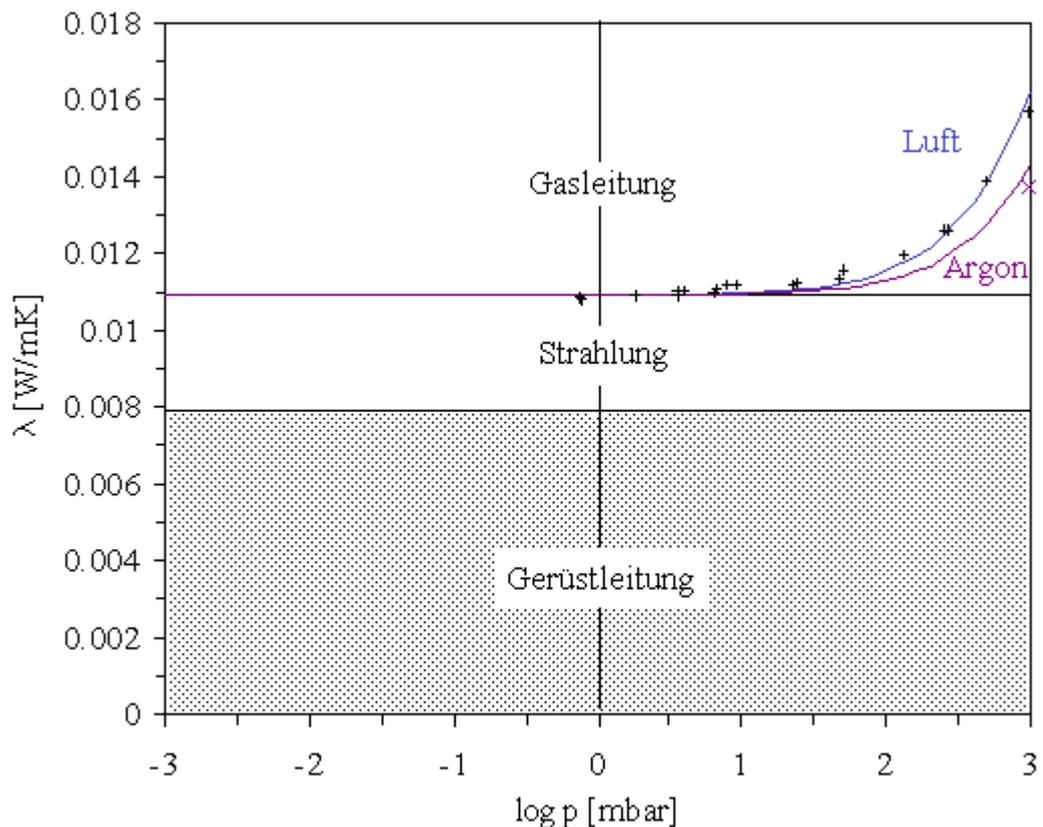


Abb. 5.2 Effektive Wärmeleitfähigkeit λ einer 13 mm dicken Aerogelkachel (Dichte $\rho = 162 \text{ kg/m}^3$) in Funktion des Gasdruckes für Luft und Argon bei $25 \text{ }^\circ\text{C}$. Der Strahlungsanteil wurde rechnerisch nach dem Konzept des effektiven Emissionsvermögens bestimmt. Für das Emissionsvermögen der Ränder wurde $\epsilon = 0,84$ (Glas) angenommen. Der Festkörperanteil λ_s ergibt sich zu 8 mW/mK . Das Evakuieren bewirkt eine Reduktion um $5,3$ bzw. $3,2 \text{ mW/mK}$ (für Luft bzw. Argon). Um die gemessene Reduktion mit dem Druck richtig wiederzugeben, wurde in (5.9) für den effektiven Porendurchmesser $d = 80 \text{ nm}$ gesetzt.

5.1.4 Einfluss der Temperatur und der Randemissivitäten

In Fensterapplikationen ist das Verhalten im Temperaturbereich um $10 \text{ }^\circ\text{C}$ wichtig. Bei dieser Temperatur liegt das Maximum des thermischen Spektrums bei etwa $10 \text{ }\mu\text{m}$, also noch im Gebiet, wo Aerogel einen hohen Extinktionskoeffizienten besitzt (Abb. 5.1). In dem für Fenster wichtigen Temperaturbereich folgt so der Strahlungsanteil gemäss (5.6) einem T_R^3 -Gesetz. Erst bei höheren Temperaturen, wo das thermische Spektrum gegen das Strahlungsloch zwischen 3 und $5 \text{ }\mu\text{m}$ geschoben wird, erfolgt insbesondere bei höherem Emissionsvermögen der Ränder eine stärkere Zunahme des Strahlungsbeitrages [Fri 86b].

Der hohe Extinktionskoeffizient in dem für Fenster wichtigen Temperaturbereich ist auch dafür verantwortlich, dass Ränder mit geringem Emissionsvermögen nur eine eher geringe Absenkung des Strahlungsanteiles bewirken. Durch den oben beschriebenen Randschichteffekt wird von den Grenzschichten zusätzlich Strahlung in das Medium eingespeist. Für einen Betrachter im Innern des Mediums wirkt die Randschicht so, als ob der Rand ein erhöhtes Emissionsvermögen zeige [Cap 85]. Diese Überlegung gilt für Aerogel, das in direktem Wärmekontakt mit den Rändern steht. Wird das Aerogel durch Luftspalten von den Rändern getrennt, so findet eine gewisse Entkopplung von Strahlung und Leitung statt, wodurch ein geringeres Emissionsvermögen der Ränder stärker wirksam wird. Abb. 5.3 zeigt den Einfluss des Emissionsvermögens von Rändern, die in direktem Wärmekontakt mit dem Aerogel stehen:

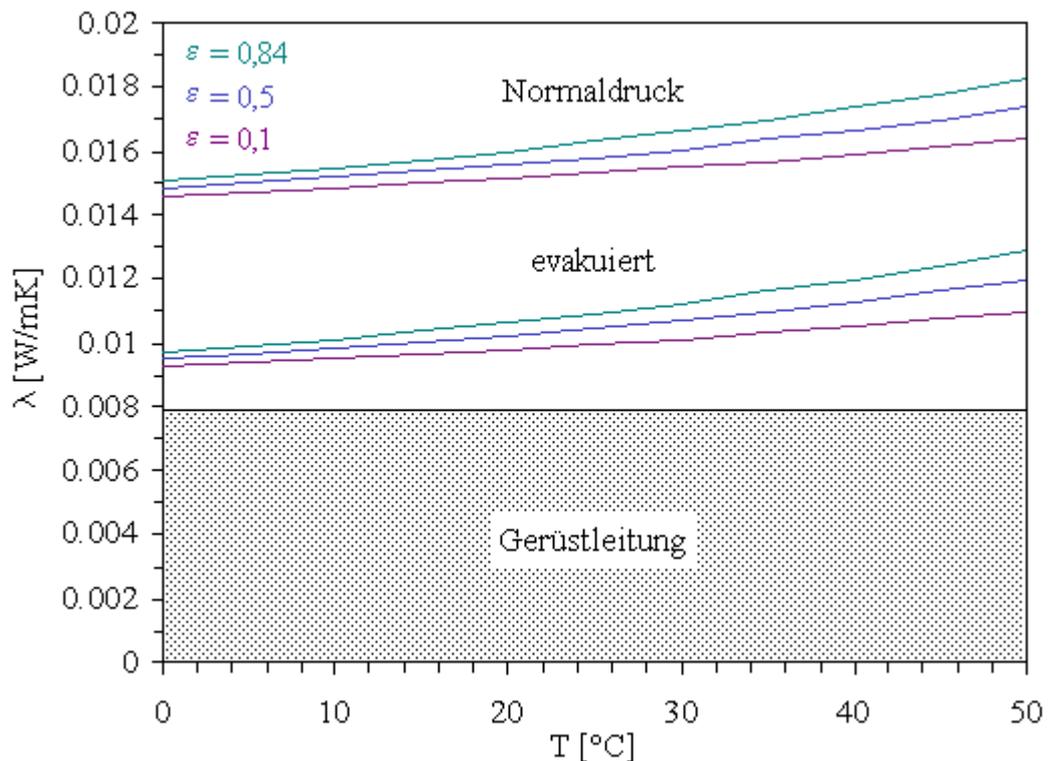


Abb. 5.3 Scheinbare Wärmeleitfähigkeit λ einer 13 mm dicken Aerogelkachel der Dichte $\rho = 162 \text{ kg/m}^3$ im Temperaturbereich zwischen 0 und 50 °C für verschiedene Randemissivitäten ($\varepsilon = 0,84 / 0,5 / 0,1$). Durch Evakuieren erfolgt eine Reduktion um 5,3 mW/mK (untere Kurvenschar). Die Rechnung erfolgte mit dem Konzept der effektiven Emissivität, wobei aus dem Vergleich mit den Messungen für den Festkörperanteil $\lambda_S = 8 \text{ mW/mK}$ angenommen werden musste.

5.1.5 Einfluss der Probendicke

Nachdem durch Messung der effektiven Wärmeleitfähigkeit λ und anschließender Rechnung auf Grund des Konzeptes der effektiven Emissivitäten die einzelnen Beiträge zum Wärmetransport bestimmt wurden, kann nun der Einfluss der Probendicke auf den k-Wert angegeben werden (Abb. 5.4). Die Rechnung basiert auf der bei Fensterapplikationen typischen Temperatur von 10 °C. Für die Wärmeübergangszahlen wurden die Werte nach DIN-Norm 4108 angenommen ($\alpha_i = 8 \text{ W/m}^2\text{K}$, $\alpha_a = 23 \text{ W/m}^2\text{K}$):

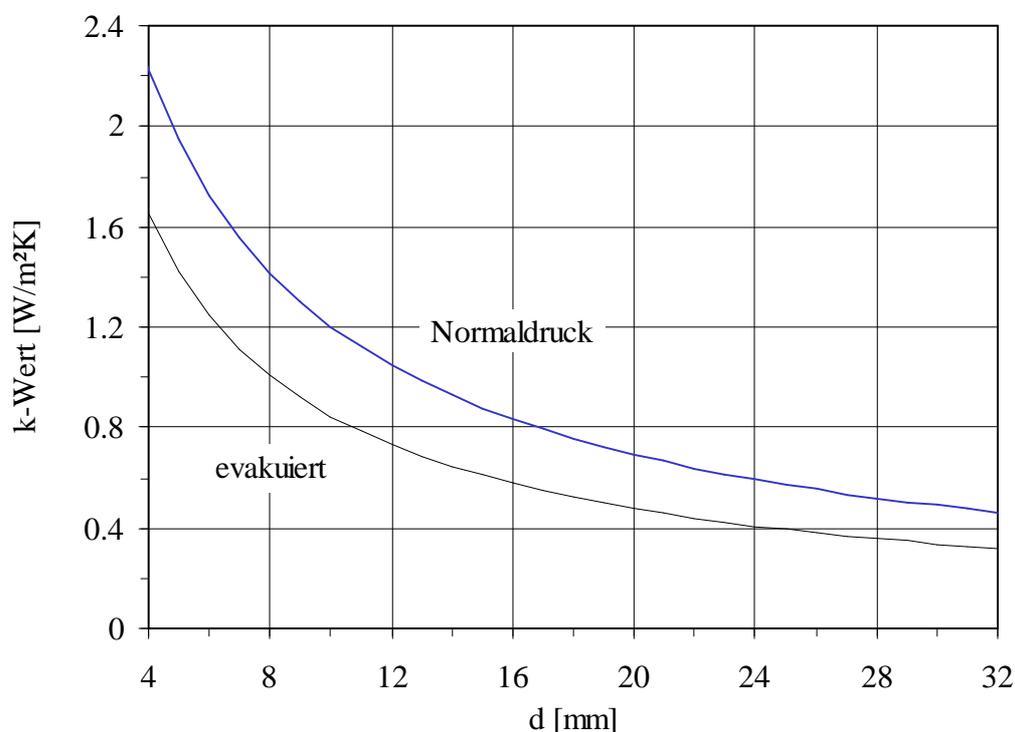


Abb. 5.4 Einfluss der Aerogeldicke auf den k-Wert bei Umgebungsdruck und im evakuierten Zustand bei 10 °C. Für die Rechnung wurde eine Dichte von 162 kg/m^3 und ein Festkörperanteil $\lambda_S = 8 \text{ mW/mK}$ angenommen.

Der Wärmedurchgangswiderstand des Gerüsts und des Porengases steigt linear mit der Plattendicke an. Demgegenüber strebt der Wärmedurchgangskoeffizient für Strahlung erst bei wachsender Dicke, wo die Aerogelprobe für die IR-Strahlung zunehmend opak erscheint, gegen ein lineares Verhalten.

Mit zunehmender Probendicke kann so das wärmetechnische Verhalten wohl noch weiter verbessert werden, doch handelt man sich dabei eine rapide Verschlechterung der optischen Qualitäten ein (Abschnitt 5.2). Aus diesem Grund empfehlen sich Probendicken unterhalb 20 mm.

5.1.6 Messungen an Fensterelementen

5.1.6.1 Messverfahren

Zur Ermittlung der Wärmedurchgangszahl verschiedener Aerogel- und Vakuumfenster wurde ein Plattengerät aufgebaut [Reb 87]. Das zu prüfende Fensterelement wird dabei zwischen eine Heiz- und eine Kühlplatte (500 × 500 mm) eingespannt, deren Temperaturen auf vorgewählte Werte eingeregelt werden können. Der dadurch erzeugte Wärmestrom j wird beidseitig mit je einem Wärmeflussmesser gemessen. Bei bekanntem Temperaturgefälle ΔT kann so der Wärmedurchgangskoeffizient Λ bestimmt werden mit:

$$(5.10) \quad \Lambda = \frac{j}{\Delta T} \quad , \quad [\text{W}/\text{m}^2\text{K}] \quad .$$

Der k-Wert wird nach der DIN-Norm 4108 berechnet mit:

$$(5.11) \quad k = \left(\frac{1}{\alpha_i} + \frac{1}{\Lambda} + \frac{1}{\alpha_a} \right)^{-1} \quad \text{mit } \alpha_i = 8 \text{ W}/\text{m}^2\text{K} \ , \ \alpha_a = 23 \text{ W}/\text{m}^2\text{K} \quad .$$

Die Wärmeflussmesser ermitteln mit ihrer aktiven Fläche von 60 × 60 mm den Wärmefluss in der Mitte des Prüflings. Bei der verwendeten Grösse der Prüflinge kann dort das Wärmestromfeld als homogen betrachtet werden. Dies wurde bestätigt durch Rechnungen mit einem Computerprogramm zur Ermittlung des Wärmestromfeldes (kobru 86). Danach konnte auf einen Schutzring verzichtet werden. Das Gerät entspricht damit weitgehend den Konstruktionsmerkmalen der DIN-Norm 52616.

Das Temperaturgefälle über dem Prüfling betrug üblicherweise 10 °C. Haben sich stationäre Bedingungen eingestellt, so dauert der eigentliche Messvorgang etwa eine Stunde, um kleine Schwankungen der Temperaturregelung auszugleichen.

Bei den evakuierbaren Fensterelementen wird der Unterdruck durch eine Drehschieberpumpe erzeugt. Die Druckregelung erfolgt über ein Nadelventil.

Die Datenerfassung erfolgt mit Hilfe eines PC's. Die Daten werden auf Diskette abgespeichert und können mit einem Tabellenkalkulationsprogramm ausgewertet werden.

5.1.6.2 Aerogel in Kachelform

Sämtliche Aerogelproben in Kachelform stammen von der Airglass AB in Lund (Schweden). Zu Beginn dieser Arbeit waren erst kleine Aerogelkacheln mit den Abmessungen $13 \times 180 \times 180$ mm verfügbar. Ein erstes Fensterelement wurde deshalb dadurch gefertigt, indem der Scheibenzwischenraum durch vier solcher Kacheln ausgelegt wurde. An diesem Fensterelement erfolgte die Bestimmung der verschiedenen Beiträge zum Wärmetransport (Abschnitt 5.1.3). Abb. 5.5 zeigt nun das Verhalten des k-Wertes mit dem Scheibeninnendruck:

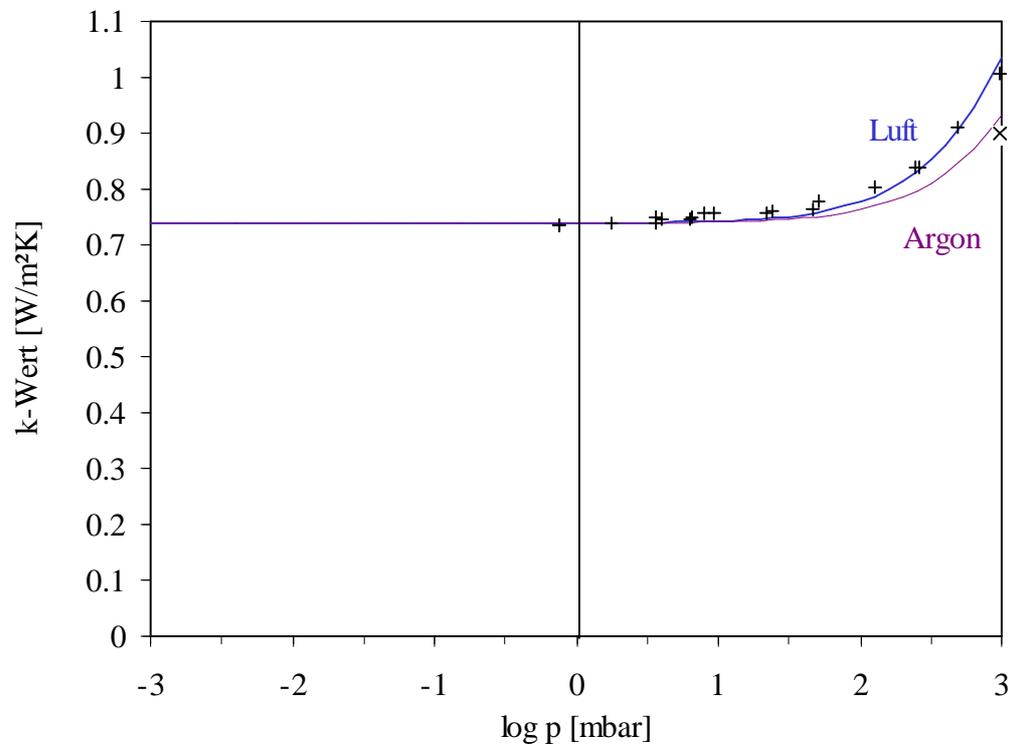


Abb. 5.5 k-Wert eines Fensterelementes mit 13 mm dicken Aerogelkacheln in Funktion des Scheibeninnendruckes für Luft und für Argon bei 25 °C. Die Dichte der Aerogelkacheln beträgt 162 kg/m^3 .

Am Ende dieser Arbeit wurden die ersten Aerogelkacheln mit Abmessungen von 600×600 mm angeliefert. Für eine solche 13,5 mm dicke Kachel wurde eine Doppelverglasung mit 15 mm Scheibenabstand konstruiert. Der Scheibenabstand musste etwas grösser gewählt werden, da die Aerogelplatte insbesondere an den Rändern herstellungsbedingte Unebenheiten aufweist. Abb. 5.6 zeigt den k-Wert dieses Elementes in Abhängigkeit von der mittleren Temperatur:

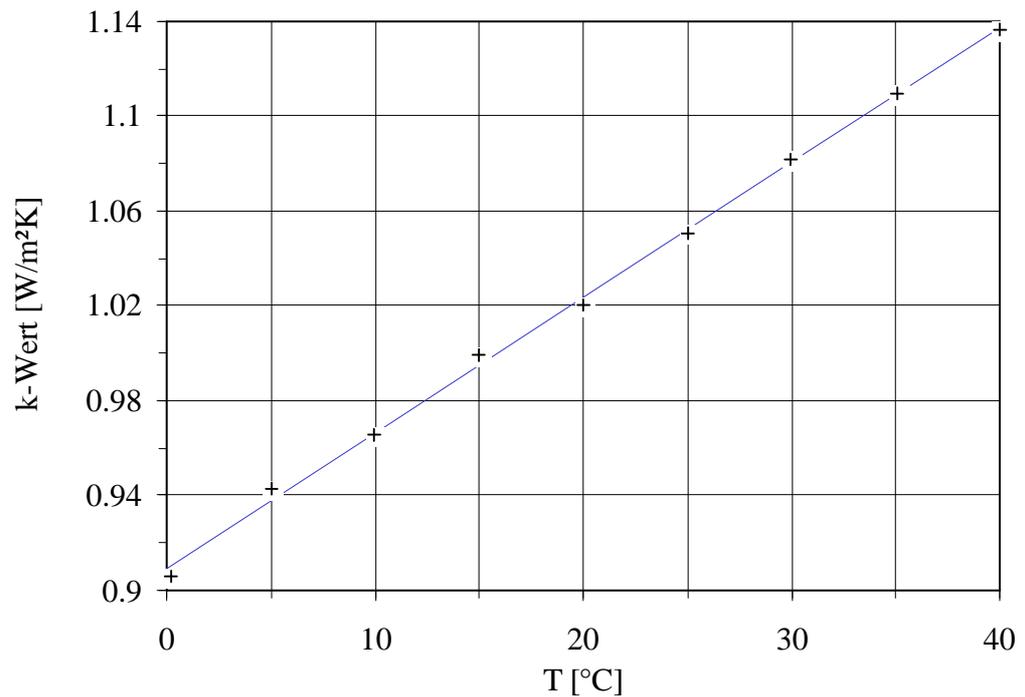


Abb. 5.6 k-Wert eines Fensterelementes mit einer $13,5 \times 600 \times 600$ mm grossen Aerogelkachel in Funktion der mittleren Temperatur. Die Aerogelplatte wurde locker in den Scheibenzwischenraum von 15 mm eingelegt. Die Dichte des Aerogels liegt bei 200 kg/m^3 .

Aus demselben Material wurde ein Element gefertigt, das beidseitig zwischen Aerogel und Glasscheibe einen Luftspalt von 12 mm aufwies. Eine der Glasscheiben dieses Elementes wies zudem eine IR-reflektierende SILVERSTAR-Beschichtung ($\epsilon = 0,10$) auf. Bei einer mittleren Temperatur von $20 \text{ }^\circ\text{C}$ wies dieser Prüfling einen k-Wert von bloss noch $0,70 \text{ W/m}^2\text{K}$ auf.

Aus einer Aerogelkachel von 20 mm Dicke wurden schliesslich zwei Elemente der Abmessungen 300×400 mm angefertigt. Das eine davon wurde evakuierbar ausgelegt und besitzt Scheiben aus Normalglas von 8 mm Dicke. Das andere weist beidseitig zwischen Aerogel und Glasscheibe (4 mm) einen Luftspalt von 6 mm auf. Abb. 5.7 zeigt das Verhalten des k-Wertes dieser beiden Elemente in Abhängigkeit der mittleren Temperatur. Wegen der geringen Abmessungen können die Messwerte nur als Vergleichswerte dienen, da schon ein beträchtlicher Anteil des Wärmeflusses durch den Randverbund vorgetäuscht wird:

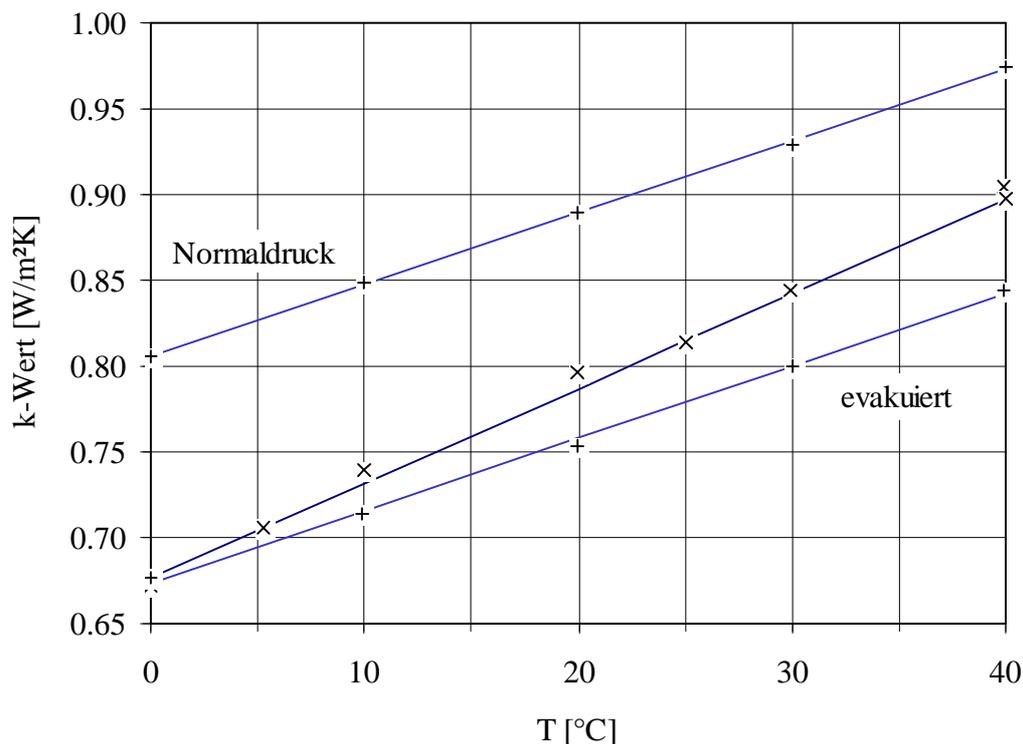


Abb. 5.7 k-Wert zweier Fensterelemente mit einer Aerogelplatte von 20 mm Dicke. Das eine davon (+) ist evakuierbar ausgelegt, das andere weist beidseitig zwischen Glasscheibe und Aerogel einen Luftzwischenraum von 6 mm auf (×).

5.1.6.3 Aerogel in Granulatform

Das vom Herstellungsaufwand günstigere und damit auch billigere Aerogelgranulat stammt von BASF. Die Dichte der Aerogelkügelchen wurde zu 216 kg/m^3 bestimmt. Es werden damit Schüttdichten von etwa 145 kg/m^3 erzielt.

Eine Schüttung aus Aerogelgranulatkügelchen weist zwei deutlich unterscheidbare Porengrößen auf: Zum einen die Poren im Aerogel selbst, die im nm-Bereich liegen, zum anderen die Luftzwischenräume zwischen den Aerogelkügelchen, die im mm-Bereich liegen. Wird der Druck in einer solchen Schüttung abgesenkt, so fällt daher die effektive Wärmeleitfähigkeit in zwei klar trennbaren Stufen ab. Zunächst verschwindet der Leitungsbeitrag des Porengases in den Aerogelporen. Wird der Druck weiter abgesenkt, so beobachtet man in einer zweiten Stufe auch das Verschwinden der Gasleitung in den Luftzwischenräumen. Vom ersten Abfallen der Leitung ist nur noch der letzte Rest zu beobachten, da schon bei Normaldruck die mittlere freie Weglänge des Porengases in den Bereich des effektiven Porendurchmessers gerät. Für die weit grösseren Luftzwischenräume hingegen tritt dieser Knudseneffekt erst bei einem Druck unterhalb etwa 1 mbar auf (Abb. 5.8):

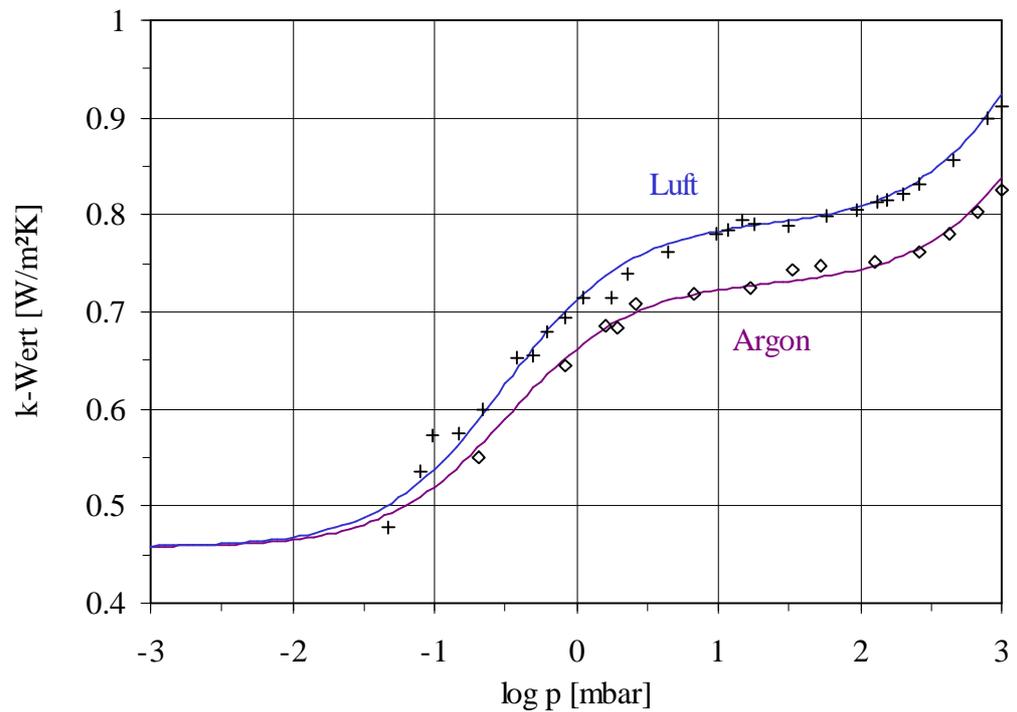


Abb. 5.8 k -Wert in Funktion des Druckes für ein Fensterelement mit einer Aerogelgranulatschüttung von 20 mm Dicke bei 25 °C. Durch den Einsatz des Schwer-gases Argon erhält man gegenüber Luft eine weitere Reduktion des k -Wertes.

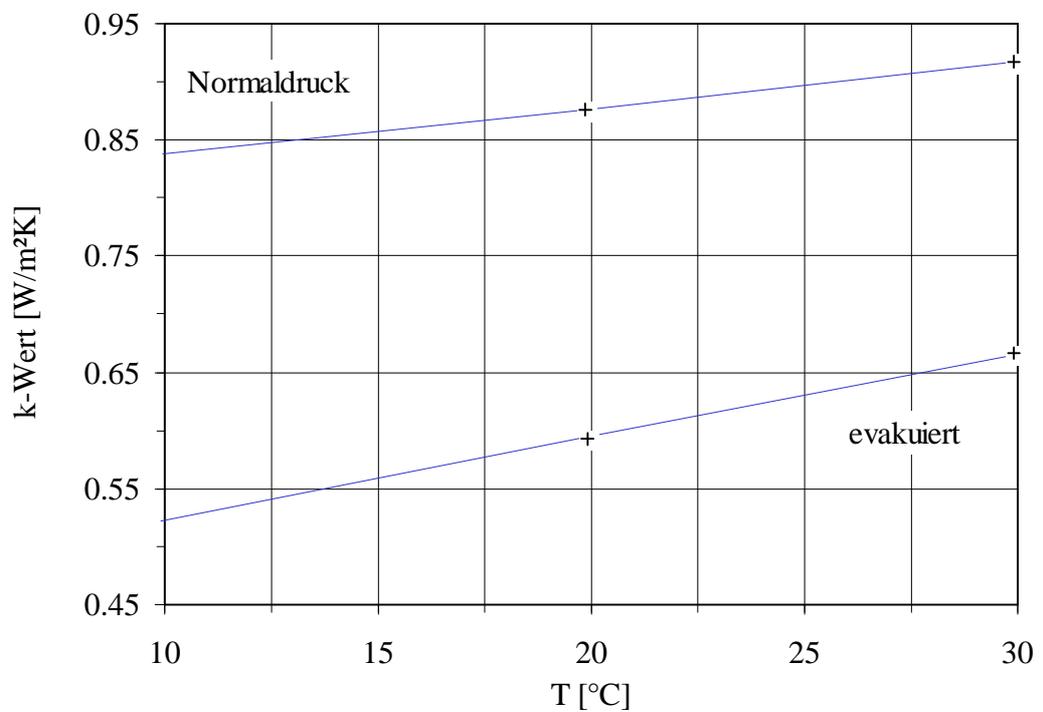


Abb. 5.9 k -Wert in Funktion der Temperatur für ein Fensterelement mit einer Aerogelgranulatschüttung von 20 mm Dicke.

Als Modell zur Berechnung wurden die Luftzellen und die Aerogelkügelchen zu gleichen Teilen in parallel und in Serie geschalteten Einheiten zusammengefasst. Zur Beschreibung der Druckabhängigkeit wurde für beide Porengrößen je ein Knudsenfaktor der Form (5.9) eingeführt. Um den Verlauf der Wärmeleitung in Funktion des Druckes richtig wiederzugeben, mussten für die effektiven Porendurchmesser 88 nm bzw. 1mm gesetzt werden. Von den tatsächlichen Porengrößen her gesehen sind dies vernünftige Werte.

In Abb. 5.9 ist schliesslich der Einfluss der mittleren Temperatur auf den k-Wert dargestellt.

5.2 Optisches Verhalten

5.2.1 Allgemeines zur Strahlungstransmission

Das Fenster als transparentes Bauteil ist in der Lage, einen gewissen Anteil der solaren Einstrahlung zu nutzen. Zur Ermittlung der Energiebilanz ist daher die Durchlässigkeit bezüglich solarer Einstrahlung wesentlich. Diese Eigenschaft wird durch den *solaren Transmissionsgrad* τ_S beschrieben.

Dabei ist nur der Wellenlängenbereich der terrestrischen Solarstrahlung, der von 280 nm bis 2600 nm reicht, von Interesse. Nur ein kleiner Teil davon (380 nm bis 750 nm) wird vom menschlichen Auge erfasst. In diesem Bereich kann zusätzlich ein *Lichttransmissionsgrad* τ_L definiert werden, der also Auskunft über die Durchlässigkeit im visuellen Bereich gibt. Während im visuellen Bereich auch die spektrale Abhängigkeit des Transmissionsgrades für die Farbwiedergabe von Interesse ist, ist im solaren Bereich nur der integrale Wert wesentlich.

5.2.2 Messverfahren

Bei klaren durchsichtigen Proben (z.B. Glasscheiben) kann der Transmissionsgrad dadurch bestimmt werden, indem man ein- und ausfallende Intensität eines gerichteten Strahles miteinander vergleicht. Man spricht dann von einem *gerichtet-gerichteten Transmissionsgrad* τ .

Liegen jedoch streuende oder allgemein richtungsverändernde Proben vor, so muss zur Erfassung der gesamten transmittierten Intensität über den gesamten Winkelbereich der Ausfallrichtung integriert werden. Dieser sogenannte *gerichtet-hemisphärische* (oder direkt-diffuse) *Transmissionsgrad* τ_d ist die für die Solarenergie relevante Messgrösse; er liegt bei

letzteren Materialtypen naturgemäss höher als der gerichtet-gerichtete Transmissionsgrad. Zur messtechnischen Erfassung der ausfallenden Strahlung im gesamten Halbraum dient ein *Kugelphotometer* (Ulbricht'sche Kugel).

Wird während des Messvorgangs die Messprobe samt Kugelphotometer geschwenkt, so wird der Transmissionsgrad für alle Einfallswinkel bestimmt. Durch Integration (3.59) kann so der *hemisphärisch-hemisphärische* (oder diffus-diffuse) *Transmissionsgrad* τ_{dif} bestimmt werden.

5.2.3 Messungen

5.2.3.1 Spektral aufgelöste Transmission

Spektral aufgelöste Transmissionsmessungen an Aerogel in Kachelform wurden am Fraunhofer-Institut für Solare Energiesysteme (ISE) mit einem Photospektrometer PE-981 der Firma Perkin-Elmer durchgeführt. Das Spektrometer wurde mit einer Ulbrichtkugel von 6 cm Durchmesser versehen und so die direkt-diffuse Transmission τ_{d} ($\Theta = 0^\circ$) für senkrechte Einfallrichtung gemessen. Abb. 5.10 zeigt das so bestimmte Transmissionsvermögen für

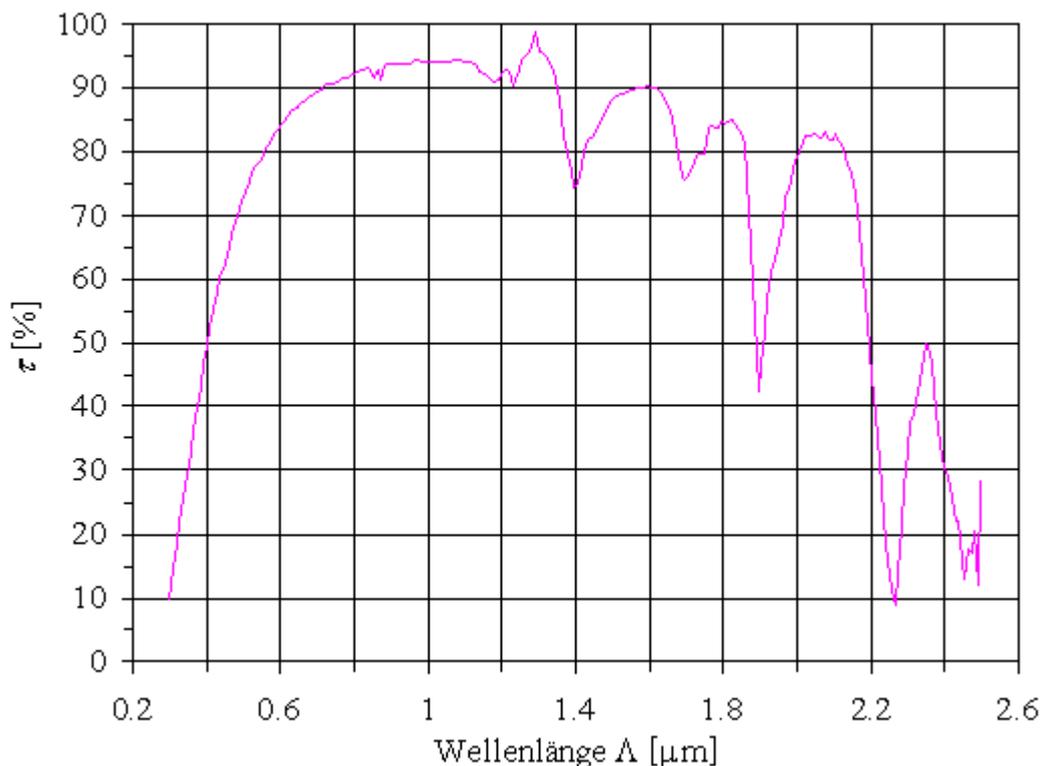


Abb. 5.10 Transmissionsspektrum einer Aerogelkachel mit 12 mm Dicke. Die Dichte betrug $\rho = 162 \text{ kg/m}^3$. Die Probe wurde in normaler Atmosphäre aufbewahrt.

eine 12 mm dicke Aerogelprobe im Wellenlängenbereich der solaren Einstrahlung (300 nm bis 2500 nm).

Die ansteigende Flanke im nahen UV-Bereich bis über den sichtbaren Bereich hinaus (200 - 800 nm) ist auf Streuung zurückzuführen. In diesem Teil der Kurve kann die Extinktion gut mit dem für Rayleigh-Streuung bekannten λ^{-4} -Verhalten in Übereinstimmung gebracht werden. Auf Grund solcher aber auch erweiterter Streumodelle können aus den Messungen Grösse und Verteilung der streuenden Teilchen extrahiert werden. Solche Modelle wurden in Abschnitt 2.3.5.3 vorgestellt. Danach kann die Streuung sowohl auf die kurzreichweitige Struktur der fein vernetzten Partikel, als auch auf Inhomogenitäten der mittleren Dichte zurückgeführt werden [Tew 86, Hun 84 und Bec 89].

Die Streuung in diesem Wellenlängenbereich kann auch mit blossem Auge festgestellt werden. Weisse Flächen erscheinen in der Durchsicht blass gelblich, weil bevorzugt Licht aus dem blauen Ende des Spektrums herausgestreut wird. Vor dunklem Hintergrund erscheint Aerogel deshalb milchig blau.

Die Peaks zwischen 1100 und 2000 nm können auf adsorbiertes Wasser zurückgeführt werden. Oberhalb von 2200 nm findet man auch Absorptionsbänder von OH- und SiO-Gruppen [Tew 86 und Rub 83]. Allgemein kann gesagt werden, dass in getrockneten Proben die Transmission höher liegt als bei Aerogel, das normalen atmosphärischen Bedingungen ausgesetzt war. Adsorbiertes Wasser kann die solare und visuelle Transmission bis über 10% vermindern [Rub 87]. Während also Wasser die wärmetechnischen Eigenschaften durch erhöhte Extinktion im IR-Bereich nur geringfügig verbessert, sind demgegenüber schon erheblichere Einbussen in der solaren Transmission zu erwarten.

Bei Aerogel in Granulatform kommt neben dem Rayleigh-Verhalten ein zweiter von der Wellenlänge nahezu unabhängiger Streumechanismus hinzu. Er kann mit der Reflexion der Srahlung an den (dielektrischen) Einzelkugelchen erklärt werden [Pla 88]. Auf Grund der vielen Reflexionen des durchtretenden Lichtstrahles an den Aerogelkugelchen geht die Durchsicht verloren, wodurch der Anwendungsbereich von Aerogelgranulat auf transparente Wärmedämmungen, Oberlichter u.ä. beschränkt bleibt.

5.2.3.2 Winkelaufgelöste Transmission an Fensterelementen

Die Vermessung der winkelabhängigen Transmission erfolgte am Fraunhofer-Institut für Solare Energiesysteme (ISE). Hier wurde eigens zur Ermittlung der Transmissionsgrade auch grösserer Elemente eine Apparatur aufgebaut [Pla 88].

Als Strahlungsquelle dient eine 2,5 kW starke Metallogen-Lampe der Firma Kobold. Ihre Farbtemperatur liegt bei 5600 °K, also nahe der Sonne. Auf der Rückseite der zu ver-

messenden Probe wird eine integrierende Kugel (Ulbrichtkugel) befestigt. Sie besitzt einen Durchmesser von 40 cm und eine Eintrittsöffnung von 8 cm Durchmesser. Auf der Kugel ist ein pyroelektrischer Empfänger montiert. Dieser Detektor besitzt eine von der Wellenlänge fast unabhängige Empfindlichkeit. Die einfallende Strahlung wird mit einem Chopper "zerhackt", der das Licht der Lampe moduliert, so dass es vom Umgebungsuntergrund unterschieden werden kann. Die gesamte Kugel samt Messprobe sind auf einem Drehtisch montiert. Dieser wird während der Messung über ein Getriebe mit kleiner Übersetzung gedreht. Die Messapparatur ermittelt so die direkt-diffusen (oder gerichtet-hemisphärischen) Transmissionsgrade τ_d für alle Einfallsrichtungen der Strahlung ($\Theta = 0^\circ - 90^\circ$).

Die Grundstruktur aller vermessenen Elemente ist immer eine Doppelverglasung. Der Verlauf der winkelabhängigen Transmission wird daher maßgeblich durch das Transmissionsverhalten der beiden Glasscheiben bestimmt. Man beobachtet danach nahezu konstante Transmission bis etwa 55° , worauf die Kurve immer schneller auf Null abfällt. Der bestimmende Prozess für diesen Verlauf ist die Grenzflächenreflexion an den Glasscheiben, wie sie durch die Fresnelformeln (3.48) und (3.49) gegeben ist. Abb. 5.11 zeigt die mit den Methoden von Abschnitt 3.3.2 berechnete Transmission einer Zweischeibenverglasung aus normalem Floatglas:

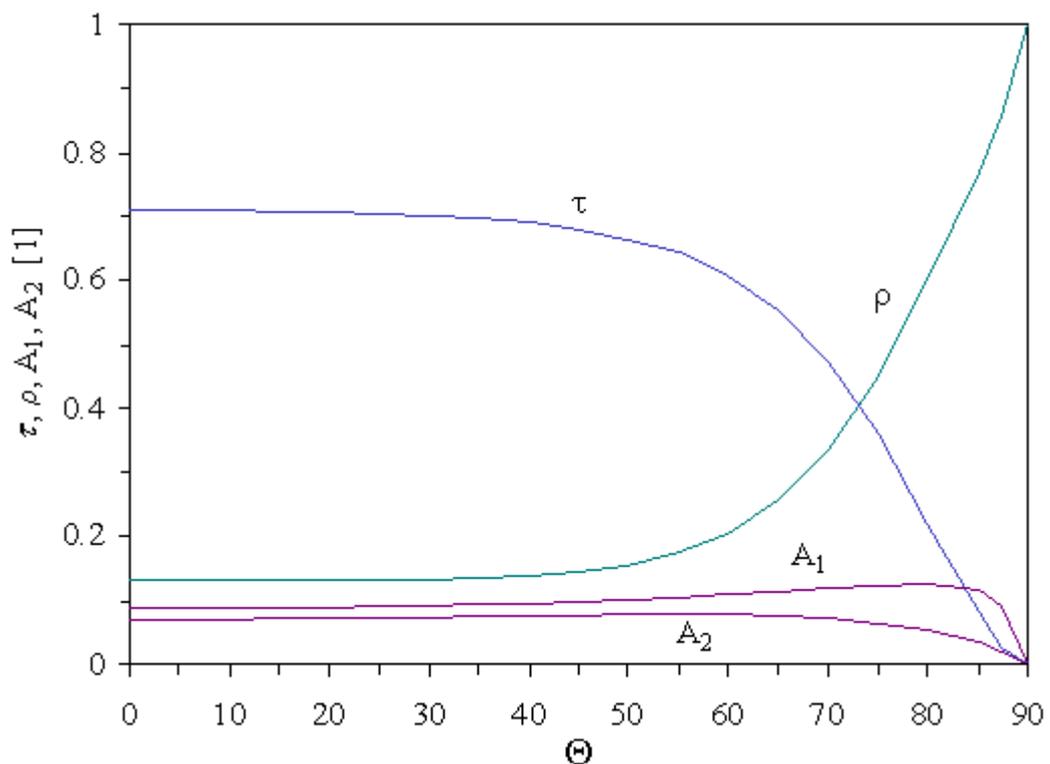


Abb. 5.11 Berechnetes solares Transmissionsvermögen τ_s einer Zweischeibenverglasung mit 4 mm dicken Floatgläsern. Ebenfalls eingetragen sind das Reflexionsvermögen ρ und die Einzelabsorptionen in den Glasscheiben A_1 und A_2 .

Wird in den Scheibenzwischenraum ein streuendes Material wie Aerogel mit mehr oder weniger starkem Diffusanteil eingefügt, so wird zwar die Gesamttransmission etwas herabgesetzt, doch wird der winkelabhängige Verlauf geprägt durch das Transmissionsverhalten der beiden Glasscheiben. Um die transmissionsvermindernde Wirkung von Aerogel genauer festzulegen, wurde jeweils als Referenz eine Doppelverglasung ohne Aerogelfüllung gemessen (Abb. 5.12):

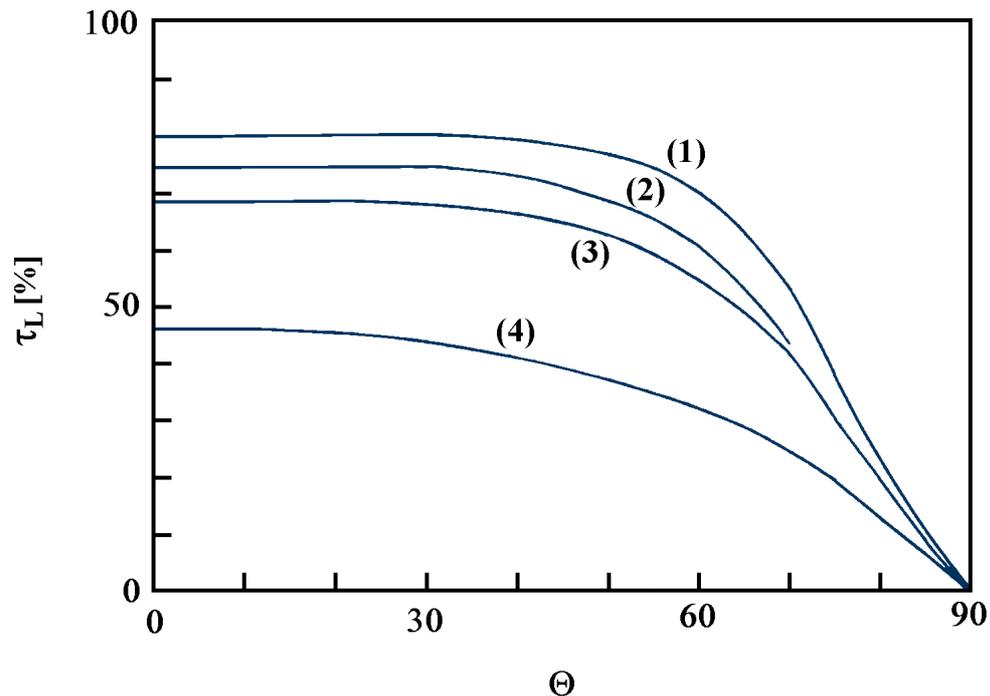


Abb. 5.12 Mit einer Ulbrichtkugel von 40 cm Durchmesser gemessene Lichttransmissionsgrade τ_L für Zweischiebenglaselemente (Floatglas) und zwar:

- (1) 4/15/4
- (2) 4/15/4* mit einfacher SILVERSTAR IR-Verspiegelung
- (3) 6/15/6 mit 13,5 mm Aerogel in Kachelform (60 × 60 cm)
- (4) 4/20/4 mit 20 mm Aerogelgranulat

Die *Berechnung* der dickenabhängigen Transmission in Aerogel erfordert Kenntnis der Streu-Phasenfunktion, der Albedo (Anteil der Streuung an der Extinktion) und der optischen Dicke für jede Wellenlänge. Das Problem ist nur numerisch und mit grossem Aufwand zu bewältigen. Immerhin existieren für isotrope Phasenfunktion analytische Näherungslösungen der Strahlungstransportgleichung. Eine Lösungsmethode mit Hilfe der "diskreten Ordinaten" ist in [Kag 69] ausführlich dargestellt. Aus einem Vergleich der dickenabhängigen Transmission für Modell und Messung können die Extinktion und die Albedo als Fit-

Parameter extrahiert werden. Auf diese Weise wurde in [Pla 88] die Albedo in Aerogelgranulat zu 95% bestimmt. Die Absorption im solaren Bereich des Spektrums ist also sehr klein.

In Tabelle 5.1 sind die experimentell ermittelten Transmissionsgrade im solaren und im visuellen Bereich zusammengefasst. Die Verglasung bestand immer aus normalem Floatglas. Bei Verwendung von eisenarmem Glas kann die Transmission noch um über 10% gesteigert werden [Pla 88].

	Konfig.	$\tau_L^d (\Theta=0^\circ)$	τ_L^{dif}	$\tau_S^d (\Theta=0^\circ)$	τ_S^{dif}
(1)	4/15/4	0,80	0,72	0,74	0,64
(2)	4/15/4*	0,74	0,65	0,51	0,44
(3)	6/15/6	0,69	0,58	0,56	0,46
(4)	4/20/4	0,46	0,35	0,48	0,36

Tab. 5.1 Mit einer Ulbrichtkugel von 40 cm Durchmesser experimentell ermittelte direkt-diffuse (τ^d) bzw. diffus-diffuse (τ^{dif}) Transmissionsgrade im visuellen und im solaren Bereich für die unter Abb. 5.12 aufgeführten Zweischiebenglas-elemente.

5.3 Schlussfolgerungen

Die von der Airglass AB (Schweden) gelieferten Aerogelkacheln weisen eine Dichte von 160 - 200 kg/m³ auf. Mit dieser Aerogelqualität erzielt man bei 13 mm Dicke und einer Umgebungstemperatur von 10 °C einen k-Wert von 1 W/m²K. Die untersuchten Aerogelkacheln weisen noch einen hohen Gerüstleitungsanteil von $\lambda_S = 8$ mW/mK auf. Dieser lässt sich verringern, wenn die Dichte des Aerogels verkleinert wird. Damit liesse sich der k-Wert verbessern, obschon dabei durch die verringerte Extinktion im IR-Bereich der Strahlungsanteil etwas zunimmt. Bei einer Dichte von 100 kg/m³ und einer Dicke von 15 mm lässt sich so für evakuiertes Aerogel ein k-Wert von 0,5 W/m²K erzielen [Fri 88]. Er liegt damit deutlich niedriger als derjenige, den man mit konventionellen Massnahmen erzielt (Tabelle 3.1). So weist etwa eine Doppelverglasung mit IR-Verspiegelung und Argonfüllung einen k-Wert von rund 1,5 W/m²K auf.

Weniger herausragend sind die optischen Eigenschaften der untersuchten Aerogelfensterelemente. Während sich das solare Transmissionsvermögen noch in einem zu einer IR-verspiegelten Zweischiebenverglasung vergleichbaren Rahmen bewegt, sind bei der visuellen Transparenz durch die Rayleigh-Streuung gewisse Einbussen in Kauf zu nehmen. Mit einer

Vergrößerung der Aerogeldicke handelt man sich daher eine rasche Verschlechterung der optischen Qualitäten ein. Obwohl sich damit die wärmetechnischen Eigenschaften noch verbessern liessen, sollte das Aerogel nicht dicker als etwa 2 cm gemacht werden.

Immerhin kann in Aerogelfensterelementen auf IR-reflektierende Schichten verzichtet werden. Solche zusätzlichen transmissionsvermindernden Schichten verbessern die wärmetechnischen Eigenschaften von Aerogelfenstern kaum. Hingegen liesse sich durch Einfügen eines Luftspaltes zwischen Aerogel und Fensterscheibe eine gewisse Entkopplung von Strahlung und Leitung erzielen, wodurch sich die Wirksamkeit einer selektiven Schicht erhöht. Mit einem solchen Fensterelement, bestehend aus 12 mm Aerogel, zwei Luftspalten von 12 mm sowie einfacher IR-Verspiegelung wurde ein k-Wert von 0,7 W/m²K erzielt.

Die bisher verfügbare Aerogelqualität zeigt zwar eine ausreichende Festigkeit bei reinen Druckbelastungen auf, jedoch führen Biege- und Scherbeanspruchungen leicht zum Bruch. Solche unverträglichen Beanspruchungen treten insbesondere auch in evakuierten Elementen auf, wenn die Aerogeloberfläche herstellungsbedingte Unebenheiten aufweist.

Wird die Aerogelkachel mit zwei Luftspalten angeordnet, so muss darauf geachtet werden, dass sie am Rand durch eine stabile Profilleiste (Abb. 5.13) geführt wird. Nur so kann die Aerogelkachel vor unverträglichen Beanspruchungen bewahrt werden. Ein solches Fenster könnte zudem höchstens als Festverglasung eingesetzt werden, da auf die Stützwirkung der Glasscheiben verzichtet wird; die beim Öffnen und Schliessen des Fensters auftretenden Beschleunigungskräfte könnten leicht zum Bruch führen, wenn das Aerogel nicht wenigstens einseitig von einer Glasscheibe abgestützt wird. Bei der Airglass AB ist man in der Lage, die Aerogelschicht schon bei deren Herstellungsvorgang auf eine Glasscheibe aufzubringen. Hingegen war es wegen dem erforderlichen Trocknungsvorgang bisher nicht möglich, einen Glas-Aerogel-Glas-Verbund herzustellen.

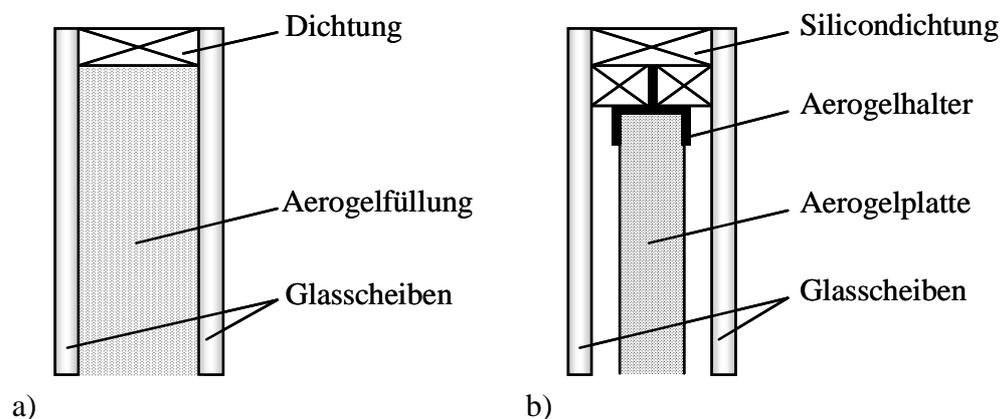


Abb. 5.13 Aufbau der geprüften Fensterelemente mit Aerogelkacheln. Zur Vermeidung unverträglicher Beanspruchungen ist in der Variante b) zur Führung der Aerogelkachel eine stabile Profilleiste (Aerogelhalter) notwendig.

Weniger heikel hinsichtlich äusserer Beanspruchungen sind *Aerogelgranulatfenster*. Bei solchen Elementen muss jedoch auf die Durchsicht verzichtet werden; Reflexion an den vielen Einzelkugeln führt zu einer zusätzlichen Streuung des Lichtes. Darunter leidet vor allem das Transmissionsvermögen im visuellen Bereich; insbesondere mit zunehmenden Einfallswinkeln fällt die Transmission relativ rasch auf Null ab.

Die isolierenden Eigenschaften sind jedoch auch herausragend gut. Mit einer 20 mm dicken Schicht aus Aerogelgranulat wurde schon bei Umgebungsdruck ein k-Wert von 0,84 W/m²K erzielt. Durch Evakuieren sinkt der k-Wert auf 0,49 W/m²K. Allerdings sind jetzt dazu Drucke unterhalb 1/10 mbar nötig; entsprechend höher sind hinsichtlich Leckrate die Anforderungen an einen Randverbund.

Nachdem in Aerogel die Absorption im solaren Bereich des Spektrums gering ist, wird die sekundäre Wärmeabgabe q_i vorwiegend durch die Verglasungsbestandteile bestimmt. Als Richtwerte können daher die Beträge für konventionelle Verglasungen aus Tabelle 3.1 dienen. Für Aerogelfenster scheint so ein g-Wert ($g = \tau_S + q_i$) um 0,6 als realistisch. Damit sind g/k-Quotienten von 0,8 und darüber denkbar. Eine derartige Verglasung weist unter durchschnittlichen Klimabedingungen des schweizerischen Mittellandes selbst bei schlechtem Ausnutzungsgrad der eingestrahnten Sonnenenergie noch an der Nordfassade eine positive Energiebilanz auf [Bin 83].

6 THERMOGRAVIMETRISCHE MESSUNGEN AN AEROGEL

6.1 Ziel der Messungen

In einer thermogravimetrischen Messung (TG) wird eine Probe in einen abgeschlossenen Probenraum mit vorgegebenem Gasmedium gebracht. Die Temperatur wird anschließend mit einer vorgegebenen Rate erhöht, wobei gleichzeitig das Gewicht der Probe gemessen wird. Aus der Gewichtsänderung durch Gasabgabe können zunächst Schlüsse gezogen werden über die physikalisch-chemischen Vorgänge, die bei gewissen Temperaturen ablaufen. Wird gleichzeitig mit einem Massenspektrometer (MS) die Gasatmosphäre kontrolliert, so erhält man genauere Auskunft über die flüchtigen Stoffarten, die frei werden. Bei speziell vorgewählter Probengeometrie können unter gewissen Bedingungen auch Aussagen über die Diffusionsgeschwindigkeit gemacht werden.

Wendet man diese Messmethoden auf *Aerogel* an, so lassen sich damit eine Reihe wichtiger Fragestellungen für die Anwendung von Aerogel behandeln. Grundlegend hierfür ist seine bemerkenswert hohe spezifische Oberfläche von 600 - 800 m²/g, an der die mit der TG beobachtbaren physikalischen und chemischen Vorgänge ablaufen. Zunächst hängen die Beschaffenheit der Oberfläche und ferner auch die darauf adsorbierten Reaktionsprodukte von der Herstellungsmethode ab. Dadurch wird schliesslich die Adsorption von atmosphärischen Gasen und von Wasserdampf bestimmt. Mit der TG können neben solchen herstellungsbedingten Eigenschaften alle Anwendungen von Aerogel untersucht werden, in denen das Material einer Temperaturerhöhung ausgesetzt ist. Daneben lassen sich Fragen der Diffusion in der porösen Struktur abklären:

- Für den Einsatz von Aerogelen in *Fenstersystemen* bei niedrigen Temperaturen ist vor allem die Desorption von atmosphärischen Gasen wichtig. Ein Grossteil ist wegen seiner Polarität Wasser. Vor allem für weniger hydrophobes Aerogel kann die kapillare Kondensation zur Zerstörung der Struktur führen [Pha 89]. Wasserinduzierter Glasbruch kann auch auf einer mikroskopischen Skala in Aerogelen auftreten, indem ein konstanter kleiner Druck in hydrophilen Aerogelproben ein Kriechen verursacht [Gro 89]. Weiter kann adsorbiertes Wasser die solare und visuelle Transmission vermindern [Rub 87]. Will man das isolierende Potential von Aerogel durch Evakuieren des Fenstersystems voll nutzen, so kann das Ausgasen von Wasserdampf zu erheblichen Schwierigkeiten bei der Einhaltung eines gegebenen Druckes führen. Solche Probleme müssen schon in der ganzen Fertigung des Fensterelementes berücksichtigt werden, ergeben sich doch durch nachträgliches Evakuieren von den Rändern her durch den langen Diffusionsweg extrem lange Evakuationszeiten.

- Bei der Anwendung in *transparenten Wärmedämmungen* oder *Kollektoren* können höhere Temperaturen auftreten. So steigt die Stillstandstemperatur eines konventionellen Flachkollektors mit Aerogelfüllung auf 200 °C [Goe 86]. Die Möglichkeit von Verfärbungen des Aerogels durch chemische Reaktionen muss daher abgeklärt werden.
- Das Verhalten von Aerogel unter erhöhten Temperaturen bis hinauf in die Gegend von 1000 °C ist von mehrfachem Interesse. Zum einen können in einer Wärmebehandlung durch Sinterung bei gleichzeitiger Schrumpfung Aerogele mit höherem Brechindex für *Cerenkov-Detektoren* hergestellt werden [Ras 89]. Zum anderen können durch Ausnutzung der hohen spezifischen Oberfläche als starke treibende Kraft zur Sinterung in einem *Gel-Glas-Übergang* optische Gläser hergestellt werden [Zar 86].

6.2 Aerogeloberfläche nach der Herstellung

Das Herstellungsverfahren der hier untersuchten Aerogelproben wurde in Abschnitt 2.1.2 beschrieben. Darin wird das Silan TMOS in dem Lösungsmittel Methanol durch Zugabe von Wasser hydrolysiert. Die dabei entstehenden Kieselsäuremoleküle werden dehydriert und vernetzen sich über Siloxan-Brücken (Si-O-Si). Auf diese Weise bilden sich über das ganze Volumen Kerne, die gleichförmig wachsen. Sie bestehen aus amorphem Siliziumdioxid im Innern und Silanolgruppen (Si-OH) an der Oberfläche:

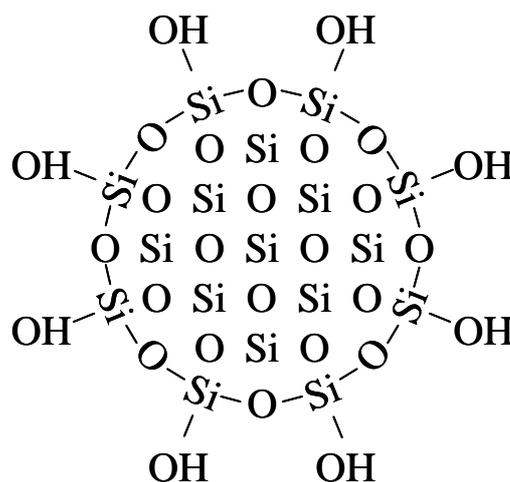


Abb. 6.1 Struktur eines Kernes sich vernetzender Kieselsäuremoleküle nach [Hen 90].

Die Konzentration und Grösse dieser Kerne steigt weiter an, so dass sie sich über Siloxan-Brücken vernetzen. Es entsteht so eine zusammenhängende Gelstruktur durchsetzt mit den Lösungsmitteln Wasser und Methanol. Der Wasseranteil kann herausgewaschen wer-

den. Besteht das Lösungsmittel nun aus Methanol, so werden im überkritischen Trocknungsprozess Veresterungsreaktionen ausgelöst, durch die ein Teil der Silanolgruppen durch Methoxylgruppen (-O-CH₃) ersetzt werden. Durch die Anwesenheit solcher organischer Radikale wird das Aerogel *hydrophob*. IR-Spektren zeigen, dass die Oberfläche selbst von hydrophoben Aerogelen noch einen erheblichen Anteil an Silanolgruppen aufweist [Pha 89]. Die Oberfläche eines TMOS-Aerogels besteht danach aus Silanolgruppen, die teilweise durch Veresterung im überkritischen Trocknungsprozess durch organische Gruppen ersetzt worden sind. Eine chemische Analyse zeigt, dass etwa 3,4% Kohlenstoff und 0,9% Wasserstoff (Gewichtsprozent) übrig bleiben [Hen 90].

Die Anwesenheit von Wasser (OH-Gruppen und molekulares H₂O) kann mit der IR-Spektroskopie verfolgt werden. Beim Gel-Glas-Übergang durch Sinterung bei Temperaturen über 1000 °C machen sich die OH-Gruppen dadurch bemerkbar, dass sie einen aufschäumenden Effekt haben [Zar 86]. Aerogele enthalten danach etwa 3000 - 3500 ppm OH-Gruppen, die durch eine Dehydrierungsbehandlung entweder durch Nitrierung oder durch Halogenisierung verringert werden können.

6.3 Thermische Behandlung zur Entfernung der organischen Rückstände

Die organischen Rückstände können durch Aufheizen der Aerogelprobe in einem Medium, das Sauerstoff enthält, entfernt werden: Bei gewissen Temperaturen werden Oxidationsreaktionen ausgelöst. Diese führen zu einem Gewichtsverlust, der mit TG-Messungen gut verfolgt werden kann. TG-Kurven in einem sauerstoffhaltigen Medium weisen zwei ausgeprägte stufenförmige Gewichtsverluste bei ~250 °C und ~500 °C auf (Abb. 6.2), verursacht durch Desorption von chemischen Verbindungen aus Oxidationsreaktionen [Pau 89]. Aufoxidation von Methanol kann etwa zur Bildung organischer Säuren gemäss (2.3) und (2.4) führen. Nach einer Wärmebehandlung weisen die Proben einen Kohlenstoffgehalt von 0,3% und einen Wasserstoffgehalt von 0,7% auf [Hen 90].

Die Oxidationsreaktionen sind ein exothermes Phänomen, welches zwischen 250 und 550 °C beobachtet wird. Eine Analyse der strukturellen Modifikationen mit der IR-Spektroskopie zeigt, dass organische Rückstände mit Luft reagieren, was Anlass gibt zur Bildung neuer Silanol-Gruppen. Diese Silanolgruppen kondensieren zusammen und bilden Siloxan-Brücken. Dadurch steigt der E-Modul des Aerogels an und die Dichte des Gerüsts nähert sich derjenigen von Quarzglas, wie Messungen mit Heliumpyknometrie zeigen. Solche Messungen zeigen auch, dass die Porosität der Aerogelproben während des Oxidationsprozesses vollständig offen bleibt, vorausgesetzt die Behandlung erfolge nicht bei zu hohen Temperaturen (< 500 °C) [Pha 89].

6.4 Simultane thermogravimetrische - massenspektrometrische Messungen im Temperaturbereich 20-900 °C

Um Aufschluss über die Vorgänge an der Aerogeloberfläche zu erhalten, wurden TG-Kurven unter Argon, Stickstoff und Luft aufgenommen. Gleichzeitig wurde mit einem Massenspektrometer die desorbierenden Gase analysiert, die den jeweiligen Gewichtsverlust verursachen. Mit dem MS wurde so die Desorption der atmosphärischen Gase N₂, O₂, CO₂, von Wasserdampf H₂O und Kohlenmonoxid CO untersucht. Ausserdem wurde auch nach der Abgabe von Methanol (MeOH) und Aethanol (AeOH) gesucht.

Die aufgezählten Stoffe verursachen Ionenströme gemäss folgender Tabelle:

m/e	H ₂ O	N ₂	CO	O ₂	CO ₂	MeOH	AeOH
12			6,3		9,7		
14		14	0,8				
16	1,8		2,8	18	16		
17	26						
18	100						
22					2.1		
28		100	100		13		
31						100	100
32				100		80	
44					100		
45					1,2		60
46							30

Tab. 6.1 Relative Ionenströme bei 90 eV Ionisierungsenergie [%] nach [Bal 82].

Mit Hilfe von Tabelle 6.1 kann die Zusammensetzung der abgegebenen Gase im Verlauf der Thermogramme angegeben werden.

Danach unterscheiden sich Thermogramme, die in einem Medium mit Sauerstoffanteil durchgeführt wurden, grundlegend von solchen ohne Sauerstoff (Abb 6.2). Der totale Gewichtsverlust bis 900 °C beträgt zwar in allen Fällen etwa 8%. Auch für den Gewichtsverlust unterhalb 100 °C, der hauptsächlich auf Desorption von Wasser zurückgeführt werden kann, findet man bei allen Proben je nach Hydrophobizität 1 - 2%. Die stufenförmigen Gewichteinbussen zwischen 250 - 550 °C findet man jedoch nur bei Anwesenheit von Sauerstoff. Die erste Stufe bei ~270 °C ist immer zu beobachten, die zweite Stufe bei ~520 °C erscheint bei uns jedoch nur bei gegenüber atmosphärischer Konzentration reduziertem Sauerstoffgehalt.

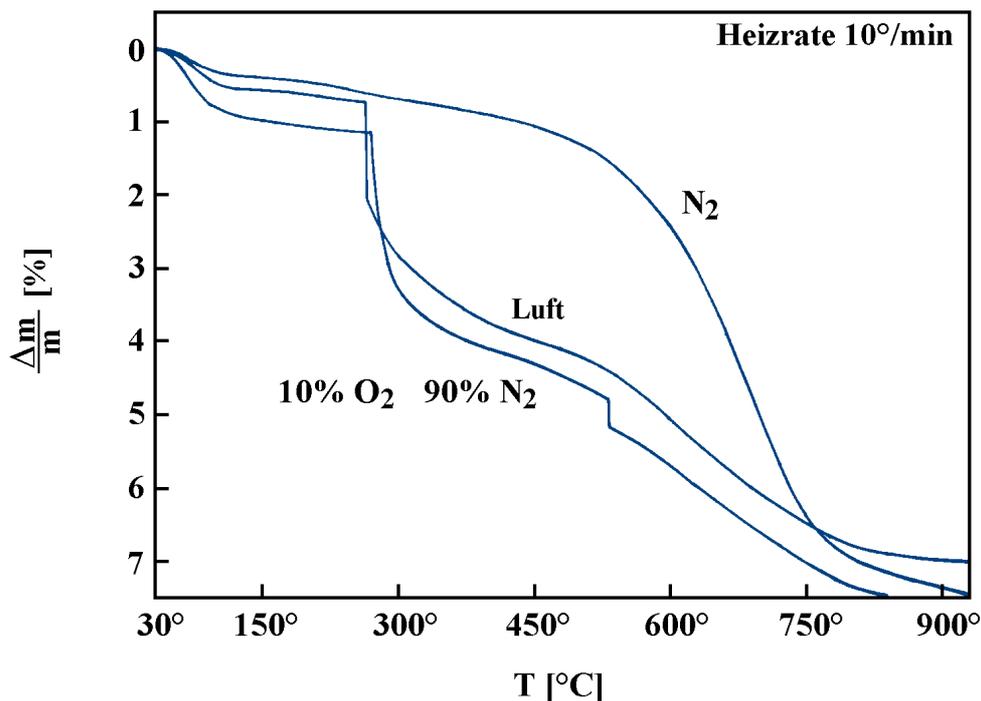


Abb. 6.2 Vergleich des Verlaufes von Thermogrammen in Medien mit und ohne Sauerstoffanteil.

An beiden Stufen wurde CO_2 ($m/e = 44$), Wasser ($m/e = 18$) und Aethanol ($m/e = 45$) gemessen, bei der ersten Stufe zusätzlich noch Methanol ($m/e = 31$). In einem Medium ohne Sauerstoff erfolgt der Gewichtsverlust kontinuierlich zwischen $500 - 800^\circ\text{C}$. In reiner Stickstoffatmosphäre misst man dort eine erhöhte Abgabe von CO_2 ($m/e = 44$) mit einem Maximum bei 650°C . Dieses Kohlendioxid muss aus Sekundärreaktionen herstellungsbedingter Rückstände stammen, die auch stattfinden, wenn kein Sauerstoff von aussen zugeführt wird. In diesem höheren Temperaturbereich wird zunehmend auch Wasser ($m/e = 17, 18$) abgegeben, was auf die Dehydrierung von restlicher Kieselsäure ($\text{Si}(\text{OH})_4$) hinweisen könnte. Eine kontinuierliche Zunahme der Wasserabgabe mit der Temperatur findet man sowohl in einem Medium mit, als auch in einem solchen ohne Sauerstoffanteil.

Um auch die Abgabe von N_2 ($m/e = 28, 14$) und CO ($m/e = 28, 12$) messen zu können, wurden schliesslich Messungen unter einer Argon-Atmosphäre gemacht. Die Proben wurden dabei zunächst evakuiert und dann mit Argon geflutet. Die TG-Kurve zeigt ein gegenüber N_2 -Messungen analogen Verlauf, d.h. ohne oxidationsbedingte Einbrüche und mit einer kontinuierlichen Gewichtsabnahme zwischen $500 - 800^\circ\text{C}$. (Abb. 6.3).

Bei den Messungen unter Argon fällt der relativ hohe Anteil des Ionenstromes mit $m/e = 28$ auf (max. bei $\sim 750^\circ\text{C}$). Dieser kann wegen der begleitenden Linie bei $m/e = 14$ zum Teil auf N_2 zurückgeführt werden. Stickstoff sollte jedoch bei weit geringeren Tempera-

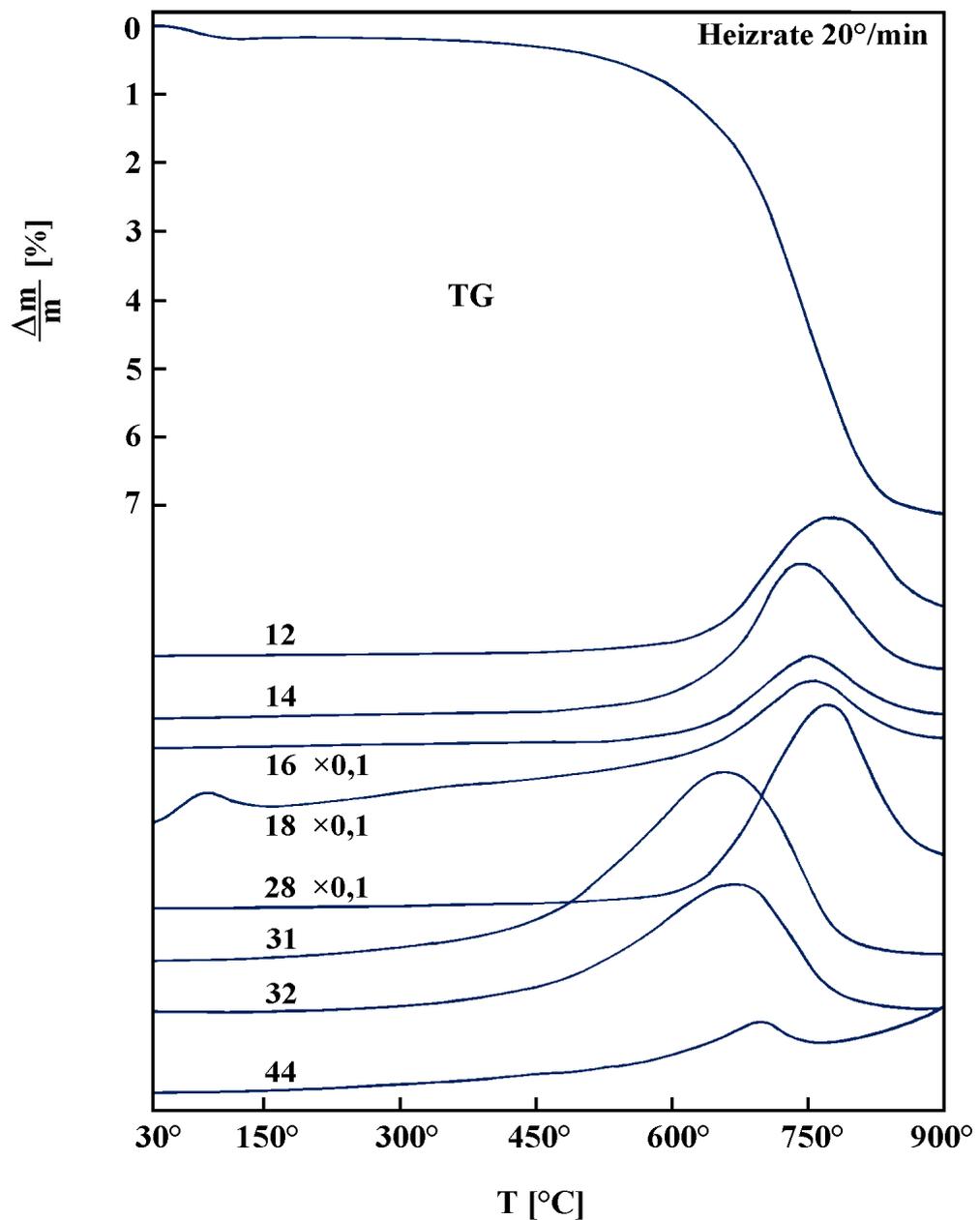


Abb. 6.3 TG-Messung unter Argon. Eingetragen sind auch die Ionenströme mit den angegebenen Masse - Ladungsverhältnissen m/e.

turen desorbiert werden. Ein erheblicher Anteil muss daher wohl auf CO zurückgeführt werden, insbesondere auch daher, weil die begleitende Linie bei $m/e = 12$ deutlich erscheint. Organische Verbindungen wie Methanol ($m/e = 31, 32$) erscheinen schon bei etwas tieferen Temperaturen (max. bei ~ 650 °C).

Die Proben weisen am Schluss der Messung einen bräunlichen Kern auf, d.h. nur die Randzonen zeigen die ursprüngliche glasklare Transparenz. Das lässt auf einen diffusionskontrollierten Vorgang schliessen: Unter Sauerstoffmangel bleibt in der Kernzone unreaktier-

ter Kohlenstoff sitzen. Die Randzone mit ihren kürzeren Diffusionswegen erscheint hingegen ohne solche Kohlenstoffreste. Bestätigt wird eine solche Interpretation durch Messungen, bei welchen die Proben vor der Messung nicht evakuiert wurden und bei Messungen in einem sauerstoffhaltigen Medium. Dort tritt keine Braunfärbung ein.

Es scheint so, als lasse sich der Stickstoff und der Sauerstoff durch Evakuieren leicht entfernen. Die vollständige Entfernung von Wasser gelingt aber nur, wenn die Temperatur erhöht wird. Die erste Gewichtseinbusse bis $T < 100 - 200 \text{ }^\circ\text{C}$ bei vorerst evakuierten Proben kann gemäss Massenspektrometer nur auf physisorbiertes Wasser zurückgeführt werden und beträgt dann je nach Probe etwa 1%.

6.5 Physisorbierte Stoffe bei Temperaturen unterhalb $250 \text{ }^\circ\text{C}$

6.5.1 Thermogravimetrische Befunde

Wenn Proben ohne vorheriges Evakuieren einer TG-Messung unterworfen werden, zeigen sie unterhalb $250 \text{ }^\circ\text{C}$ immer dasselbe charakteristische Verhalten unabhängig davon, ob die Messung in Sauerstoff- oder Stickstoffatmosphäre erfolgt (Abb. 6.4).

Um den Einfluss der Diffusion abzuklären, wurde die Probengeometrie immer gleich gewählt (Würfel der Kantenlänge 1 cm) und die Heizrate zwischen $5 - 20 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ verändert. Die Heizrate hatte keinen wesentlichen Einfluss auf den TG-Verlauf. Das deutet darauf hin, dass der Überdruck in der Probe infolge der desorbierenden Gase über Volumendiffusion rasch (verglichen mit der Heizrate) abgebaut wird. Man befindet sich demnach bei den gewählten Heizraten immer nahe dem Desorbtionsgleichgewicht gekennzeichnet durch die Partialdrucke des umgebenden Mediums und die jeweilige Temperatur.

Der gesamte Gewichtsverlust oberhalb der "Oxidationskante" beträgt etwa 3%. Durch Hochfahren auf eine feste Temperatur und stationäres Weiterfahren wurde festgestellt, bei welchen Temperaturen sich dieser Gewichtsverlust einstellt. Bei $60 \text{ }^\circ\text{C}$ werden hiernach schon etwa 85% des Verlustes sofort erreicht, die restlichen 15% werden über langsame Diffusionsmechanismen (Oberflächendiffusion) im Laufe etwa einer Stunde abgebaut. Bei $80 - 100 \text{ }^\circ\text{C}$ stellt sich der gesamte Gewichtsverlust praktisch sofort ein. Aus der Tatsache, dass zur Desorption Temperaturen unterhalb $100 \text{ }^\circ\text{C}$ ausreichen, kann schon geschlossen werden, dass es sich um physisorbierte und nicht um chemisorbierte Stoffe handeln muss.

Unter beliebigen Bedingungen zeigt das Massenspektrometer in diesem Temperaturbereich Wasser an. Bei Proben unter Argon wurde in diesem Temperaturbereich auch nach Stickstoff gesucht, jedoch nicht gefunden. Das mag daran liegen, dass die Proben dort vor der Messung evakuiert wurden und dabei der Stickstoff, nicht aber das Wasser, entfernt wurde.

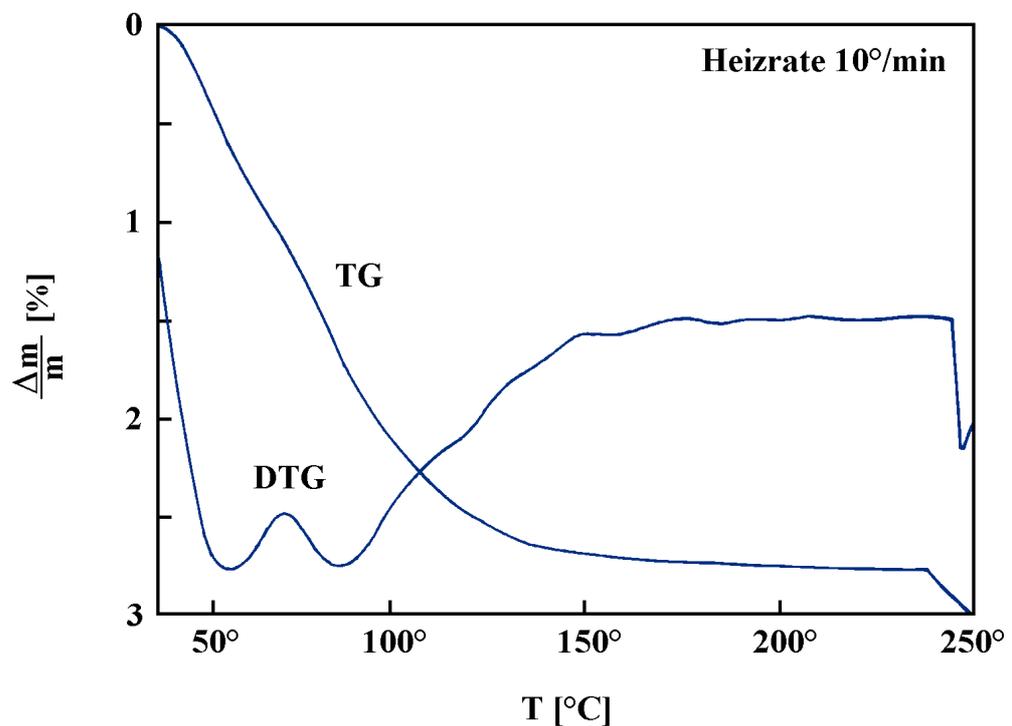


Abb. 6.4 Gewichteinbuße (TG) eines Aerogelwürfels der Kantenlänge 1 cm bei Temperaturen unterhalb der "Oxidationskante" bei 250 °C. Ebenfalls eingetragen ist die Ableitung (DTG). Dadurch wird die Gewichtsabnahme in zwei Stufen (3 Wendepunkte) besser erkennbar.

Der stufenförmige Verlauf (Abb. 6.4) legt eine solche gestaffelte Abgabe nach Desorptionsenergien nahe: Zunächst werden Stickstoff und andere atmosphärische Gase (O_2 , CO_2) desorbiert, worauf erst die Desorption von Wasser erfolgt. Die Adsorption von Wasser auf SiO_2 ist ein bekanntes Problem der Vakuumtechnik [Hau 74]. Bei Aerogel mit seiner porösen Struktur erscheint dieses Problem verschärft, indem man hier zusätzlich die Diffusion in einem porösen Adsorbens zu berücksichtigen hat.

6.5.2 Ausgasen von Aerogel bei der Anwendung in Fenstersystemen

Beim Versuch, Fensterelemente mit Aerogelfüllung vom Rand her zu evakuieren, fallen die langen Evakuationszeiten von Stunden und Tagen auf, bis ein stationärer Enddruck erreicht wird. Das deutet darauf hin, dass *Diffusionsmechanismen* in der porösen Struktur die Desorptionsgeschwindigkeit bestimmen. Im Gegensatz dazu erfolgt *Desorption* von einer freien Oberfläche viel rascher mit einer Zeitkonstante, die mit:

$$(6.1) \quad t_0^{\text{Des}} \leq \frac{1}{\nu_0} \cdot e^{q/RT} \quad ,$$

abgeschätzt werden kann [Wal 82]. Darin ist $\nu_0 \cong 10^{13} \text{ s}^{-1}$ die Schwingfrequenz der adsorbierten Adteilchen und q die Desorptionsenergie. Bei typischen Desorptionsenergien von 10^5 J/mol erhält man Zeitkonstanten von $t_0^{\text{Des}} \cong 10^{-7} \text{ s}$. In porösen Adsorbentien bestimmt die Diffusion als wesentlich langsamerer Prozess die Desorptionsgeschwindigkeit, wobei der Stofftransport über zwei Kanäle erfolgen kann:

- Diffusion als Gasströmung durch die Poren und Kanäle des Adsorbens.
- Oberflächendiffusion entlang den Porenwänden.

Die beiden Diffusionsprozesse laufen gekoppelt ab, indem Adsorption - Desorption zwischen Gerüstoberfläche und Porenvolumen für einen Übertritt der Adsorbensteilchen von einem Kanal in den anderen sorgt, sobald sich das Verhältnis adsorbierte Teilchen - freie Teilchen etwas vom Gleichgewicht entfernt, der durch die Adsorptionsisothermen beschrieben wird.

Dieser Übertritt von der adsorbierten Phase in die Gasphase lässt sich leicht beobachten: Wenn in einem Aerogelfenster die Temperatur erhöht wird, so steigt der Druck sprunghaft an. Evakuiert man das Fenster vom Rand her, so stellt man wieder einen sehr langsamen diffusionskontrollierten Druckabfall fest. Nach den Erfahrungen in Abschnitt 6.5.1 handelt es sich dabei vor allem um Wasserdampf, der langsam diffundiert. Der Diffusionsvorgang im Aerogel soll hier an einem einfachen Modell erläutert werden:

Für beide Kanäle kann eine Diffusionsgleichung formuliert werden, die durch einen Quellterm Q ergänzt werden muss, der die Adsorption - Desorption beschreibt und der für die erwähnte Kopplung der beiden Transportkanäle verantwortlich ist:

$$(6.2) \quad \frac{\partial n_G}{\partial t} - D_G \cdot \Delta n_G = -Q \quad ,$$

$$(6.3) \quad \frac{\partial n_A}{\partial t} - D_A \cdot \Delta n_A = +Q \quad .$$

Darin ist n_G die Teilchenzahldichte in Gasphase und n_A die Teilchenzahldichte in adsorbierter Phase. Durch Addition der beiden Gleichungen (6.2) und (6.3) verschwindet der Quellterm Q :

$$(6.4) \quad \frac{\partial}{\partial t} (n_A + n_G) = D_G \cdot \Delta n_G + D_A \cdot \Delta n_A \quad ,$$

wodurch aber zunächst nichts gewonnen ist, da der Zusammenhang zwischen n_A und n_G nicht zum vornherein gegeben ist. An dieser Stelle kann von der Tatsache Gebrauch gemacht werden, dass die Desorptionskinetik eine viel kürzere Zeitkonstante besitzt als der Diffusionsvorgang, dass also an jeder Stelle des Mediums zwischen Porenwand und Porenvolumen hinsichtlich Adsorption - Desorption Gleichgewicht herrscht. Der Zusammenhang zwischen n_A und n_G wird damit durch eine Adsorptionsisotherme beschrieben. Für Abschätzungszwecke nehmen wir weiter an, dass zwischen n_A und n_G ein linearer Zusammenhang besteht:

$$(6.5) \quad n_A = A \cdot n_G \quad .$$

Bei geringem Bedeckungsgrad besitzt zum Beispiel die Langmuir-Isotherme einen solchen linearen Bereich. In diesem Fall lässt sich Gleichung (6.4) sofort integrieren, indem sie sich umformen lässt zu [Dam 35]:

$$(6.6) \quad \frac{\partial n_A}{\partial t} = D \cdot \Delta n_A \quad , \quad D = \frac{D_G + A \cdot D_A}{1 + A} \quad .$$

Im Fall guter Adsorption $A \cong 10^3$ wird der effektive Diffusionskoeffizient:

$$(6.7) \quad D \cong \frac{D_G}{A} + D_A \quad .$$

Obwohl die Diffusionskonstante für Volumendiffusion D_G üblicherweise um einige Größenordnungen grösser ist als diejenige der Oberflächendiffusion D_A , erscheint hiernach der Beitrag der Volumendiffusion an die effektive Diffusionskonstante unterdrückt.

Für eine Probe der linearen Ausdehnung L , mit räumlich konstanter Anfangskonzentration n_0 und Konzentration $n = 0$ am Rand soll hier die Lösung von (6.6) mit (6.5) angegeben werden. Und zwar ist eine dimensionslose Darstellung der Lösung möglich, wenn die Zeit t auf die Zeitkonstante t_0 für Diffusion bezogen wird:

$$(6.8) \quad \tau = \frac{t}{t_0} \quad , \quad t_0 = \frac{1}{D} \cdot \left(\frac{L}{\pi} \right)^2 \quad ,$$

und die noch vorhandene Stoffmenge $N(t) = (n_A + n_G) \cdot L^d$ auf die am Anfang vorhandene Stoffmenge N_0 bezogen wird:

$$(6.9) \quad \vartheta(t) = \frac{N(t)}{N_0} \quad , \quad N_0 = n_0 \cdot L^d \quad .$$

Der Ausgasungsgrad zeigt folgendes Verhalten:

$$(6.10) \quad \vartheta(\tau) = \left[\frac{8}{\pi^2} \cdot \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-(2k+1)^2 \cdot \tau}}{(2k+1)^2} \right]^d, \quad ,$$

worin mit d die Dimension des Problemes gemeint ist. Dargestellt ist das Verhalten dieser Funktion in Abb. 6.5:

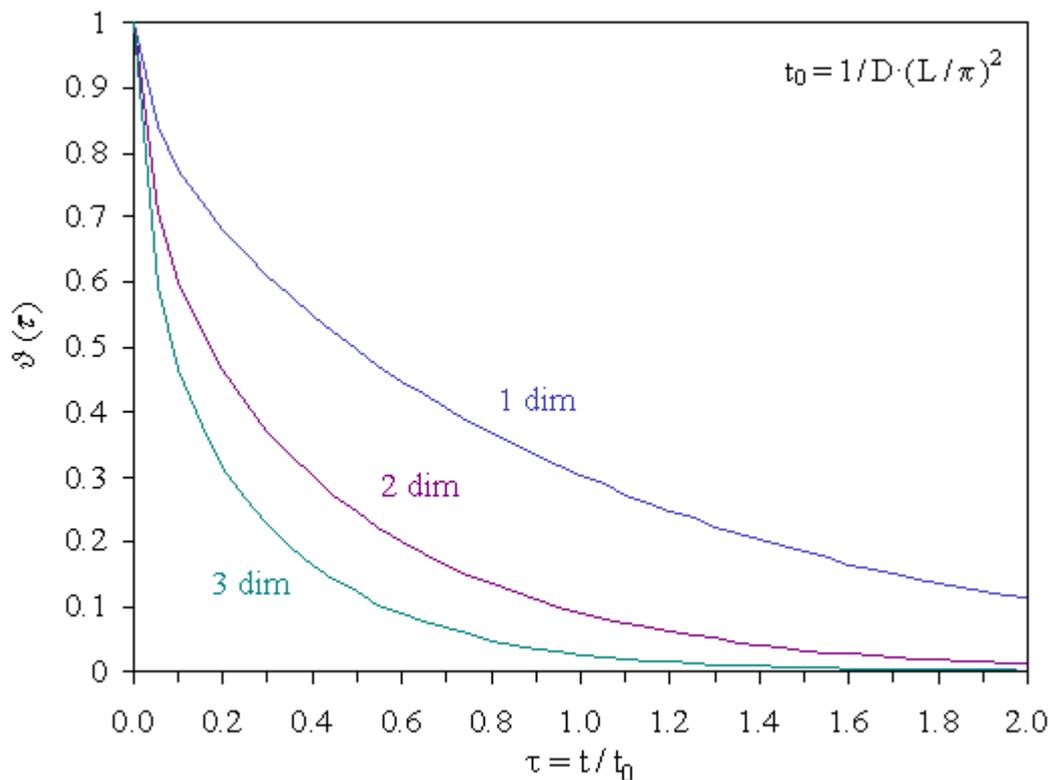


Abb. 6.5 Zeitlicher Verlauf des Ausgasungsgrades für Proben mit quaderförmiger Geometrie im ein-, zwei- und dreidimensionalen Fall.

1 dim: Freie Platte (Dicke L) mit vernachlässigbaren Randeffecten.

2 dim: Quadratische Platte (Kantenlänge L) von den Rändern her evakuiert.

3 dim: Würfel (Kantenlänge L), Versuchsanordnung bei der TG.

Für Zeiten $t > t_0$ kann die Ausgasungszeit leicht abgeschätzt werden, da dann das erste Summenglied in (6.10) dominiert. Man erhält:

$$(6.11) \quad t \cong \frac{1}{d} \cdot \ln \left[\left(\frac{8}{\pi^2} \right)^d \cdot \frac{1}{\vartheta} \right] \cdot t_0 \quad .$$

Nachdem die Linearabmessung L der Probe quadratisch in die Zeitkonstante t_0 eingeht, ist daraus ersichtlich, dass man nur zu vernünftigen Evakuationszeiten gelangt, wenn die Diffusionswege kurz gewählt werden. In der Praxis bedeutet dies für eine quadratische Aerogelplatte von 1 m^2 Fläche und 1 cm Dicke folgendes: Ist die Aerogelschicht beidseitig mit einer Glasscheibe bedeckt und wird diese bloss von den Rändern her evakuiert, so erhöht sich die Evakuationsdauer gegenüber einer freien Aerogelplatte um einen Faktor 10000!

Diese Überlegungen haben den Charakter einer Abschätzung. Die Rechnung mit einer effektiven Diffusionskonstanten D beruhen auf der Annahme (6.5). Im Prinzip liesse sich diese Konstante mit TG-Messungen ermitteln. Da jedoch die Realität diesem einfachen Modell nur näherungsweise gerecht wird, wurde auf eine weitere Untersuchung mit der TG verzichtet. Eine genaue Untersuchung müsste neben dem genauen Verlauf der Adsorptionsisothermen auch berücksichtigen, dass mehrere Stoffe gleichzeitig desorbiert werden, was zu einer Anhäufung von unbekanntem Modellparametern führen würde, die mit der TG nicht ohne weiteres bestimmt werden können.

Aus den gemachten Überlegungen können aber wichtige Schlussfolgerungen für die Herstellung evakuierter Aerogelfenster gezogen werden:

- ❑ Aerogel, das der Luft ausgesetzt war, eignet sich nicht zum Einbau in evakuierten Fenstersystemen. Die riesige Aerogeloberfläche setzt sich ins Gleichgewicht mit den Partialdrücken des umgebenden Mediums und adsorbiert dabei atmosphärische Gase und insbesondere auch Wasser.
- ❑ Zur Vermeidung langer Diffusionswege, die extrem lange Evakuationszeiten zur Folge haben, sollte Aerogel schon vor dem Einbau in das Fenstersystem entgast werden. Die Entgasung wird gefördert durch Erwärmung, wodurch der Bedeckungsgrad des Adsorptives innert nützlicher Frist absinkt, sofern gleichzeitig das Aerogel von seiner ganzen Fläche her einem Medium mit niedrigem Partialdruck des Adsorptives ausgesetzt wird. Wenn Aerogel, das bei höheren Temperaturen in einen Gleichgewichtszustand mit niedrigem Bedeckungsgrad gebracht wurde, anschliessend in ein dichtes Fenstersystem eingeschlossen wird, wächst der Bedeckungsgrad bei den niedrigeren Betriebstemperaturen auf Kosten des Gases im Porenvolumen. Neben dem Evakuieren ist dies deshalb eine Methode zur Absenkung des Druckes.
- ❑ In einem rationellen Verfahren zur Herstellung eines evakuierten Fenstersystems sollte daher das Aerogel unmittelbar nach dem Herstellungsvorgang, d.h. nach dem überkritischen Trocknungsprozess, an den eine Wärmebehandlung zur Entfernung physisorbiert Gase anschliesst, eingebaut werden.

Zusammenfassung

Obwohl Aerogele schon seit etwa 1930 bekannt sind [Kis 31 und Kis 32], rückte dieses Material erst in neuerer Zeit wieder in den Mittelpunkt des Interesses: Seine mikroporöse Struktur verleiht ihm hervorragende isolierende Eigenschaften bei gleichzeitig hoher Transparenz. Anwendungen in transparenten Wärmedämmungen oder in hochisolierenden Fenstersystemen drängen sich damit auf.

Im einführenden *Abschnitt 1* wird versucht, die Stellung des Fensters und seine energetische Bewertung näherzubringen. Es wird gezeigt, dass evakuierte Fenster oder Zweischeibenverglasungen mit Aerogelfüllung in energetischer Hinsicht interessante Alternativen zu konventionellen Verglasungen darstellen. Dazu werden schon zahlreiche Resultate dieser Arbeit zusammenfassend vorweggenommen.

In *Abschnitt 2* wird auf die Herstellungsverfahren, die Struktur und die Eigenschaften, wie sie sich aus der neueren Aerogelforschung ergeben, eingegangen. Die Herstellung der Aerogele umfasst zwei Hauptschritte: Die Herstellung eines Geles und dessen überkritische Trocknung. Die Struktureigenschaften werden dabei durch die Chemie der Ausgangsprodukte und durch den ganzen Verlauf des Herstellungsvorganges gesteuert.

Zur Ermittlung der Struktureigenschaften stehen neben den Standardverfahren wie Quecksilberporosimetrie und Stickstoff-Adsorption auch direkte Beobachtungstechniken zur Verfügung. So konnte mit REM-Aufnahmen leicht eine obere Grenze für die Grösse der Struktureinheiten angegeben werden. Es wurde jedoch im Elektronenstrahl eine Sinterung und damit eine Vergrösserung der Teilchen beobachtet. Eine neuere Möglichkeit, Strukturparameter zu extrahieren, ist die Kleinwinkelstreuung und die Interpretation der Streudaten aus der Sicht der fraktalen Geometrie.

Aus der Struktur von Aerogel ergeben sich eine Reihe von erstaunlichen Eigenschaften und Anwendungen, auf die in *Abschnitt 2* ebenfalls eingegangen wird. Dabei wird insbesondere auch auf die Anwendung von Aerogel in Fenstersystemen und in transparenten Wärmedämmungen eingegangen.

In *Abschnitt 3* werden die Kenngrössen zur energetischen Bewertung von Fenstern genau definiert und deren Auswirkung auf das energetische Verhalten diskutiert. Im weiteren werden die Grundlagen zur Berechnung dieser Kenngrössen für konventionelle Fenster erarbeitet. Daraus ergibt sich eine Darstellung der Strategien zur Stopfung des Wärmelecks bei Fenstern und eine zusammenfassende Darstellung der Glaskenngrössen für konventionelle Verglasungen.

Danach besitzt eine Zweifachverglasung aus Normalglas einen k-Wert von 2,79 W/m²K und einen g-Wert von 0,76. Durch Verwendung einer IR-Verspiegelung und einer Argonfüllung sinkt der k-Wert auf 1,46 W/m²K bei einem g-Wert von 0,63. Als

wesentlicher Beitrag zur Verringerung des Wärmetransportes erweist sich dabei die Reduktion des Strahlungsbeitrages. Als eigentliches Energiesparfenster kann eine Dreifachverglasung mit zweifacher IR-Beschichtung und Kryptonfüllung gelten. Man erzielt damit einen k-Wert von $0,71 \text{ W/m}^2\text{K}$ bei einem g-Wert von $0,48$.

In *Abschnitt 4* erfolgt eine Erweiterung des konventionellen Fenstermodelles auf evakuierte Fenster. Die Grundidee bei evakuierten Fenstern ist die, dass nach einer effizienten Verringerung des Strahlungstransportes durch IR-Verspiegelung nun auch der Leitungs-Konvektionsanteil abgesenkt werden soll. Das erweiterte Modell stützt sich deshalb auf eine genaue Betrachtung der effektiven Wärmeleitfähigkeit des Füllgases in Abhängigkeit des Scheibeninnendruckes. Zusätzlich muss auch die Wärmebrückenwirkung der jetzt erforderlichen Distanzhalter einbezogen werden. Das erweiterte Modell wurde experimentell verifiziert an Fenstersystemen mit grossem (50 mm) und solchen mit kleinem ($0,32 \text{ mm}$) Scheibenabstand. Dabei ergab sich eine gute Übereinstimmung.

Das Problem der Handhabung grosser evakuierter Volumina (Implosionsgefahr!) legen die Verwendung von kleinen Scheibenabständen nahe. Kleine Scheibenabstände haben zudem den Vorteil, dass sehr kleine, praktisch unsichtbare Distanzhalter verwendet werden können, jedoch den Nachteil, weit kritischer auf Lecks zu reagieren.

Um den Leitungsanteil des Füllgases zum Verschwinden zu bringen, sind Drucke unterhalb 10^{-3} mbar erforderlich. Für die Aufrechterhaltung solcher Vakua über Jahrzehnte müssten Metall- oder Glasrandverbundsysteme entwickelt werden, die derzeit technisch noch nicht verfügbar sind.

Bei grossen Scheibenabständen ist die durch Absenkung des Gasdruckes erzielbare Reduktion des k-Wertes vorwiegend auf die Vermeidung der Konvektion zurückzuführen. Dazu reichen vergleichsweise bescheidene Vakua unterhalb 100 mbar aus. Die Anforderungen an solche Randverbundsysteme wären damit weniger hoch.

Wenn die Wärmebrückenwirkung der Distanzhalter minimiert werden kann, sind k-Werte in der Nähe an der durch die Strahlung gegebenen Grenze von $0,5 \text{ W/m}^2\text{K}$ denkbar. Da das solare Transmissionsvermögen gegenüber konventionellen Zweischeibenverglasungen nicht vermindert wird, erzielt man damit vergleichbare g-Werte ($0,63$ und darüber).

In *Abschnitt 5* wird die Anwendung von Aerogel in Fenstern untersucht. Auf Grund seiner mikroporösen Struktur und der Eigenschaft, in dem bei Fensterapplikationen relevanten Temperaturbereich IR-Strahlung wirkungsvoll zurückzuhalten, besitzt Aerogel hervorragende isolierende Eigenschaften. Eine weitere Reduktion ist gar noch möglich, wenn das Porengas evakuiert wird. Dazu genügt freilich ein Absenken des Druckes unterhalb 50 mbar , da bei der kleinen Porengrösse der Knudseneffekt schon bei Normaldruck eintritt und die Gasleitung schon dort reduziert erscheint.

Die Beschreibung des Wärmetransportes in Aerogel erweist sich als sehr kompliziert, da die Wärmetransportmechanismen gekoppelt erscheinen. Jedoch gelingt es mit einem halbempirischen Modell nach [Cap 85], das experimentelle Verhalten gut wiederzugeben. Aus dem Vergleich mit den Messungen erhält man als Modellparameter für die Gerüstleitung $\lambda_S = 8 \text{ mW/mK}$. Bei der uns zur Verfügung stehenden Aerogelqualität ($\rho = 160 - 200 \text{ kg/m}^3$) wird damit der Wärmetransport durch die Gerüstleitung dominiert. Verringern ließe sich dieser Gerüstleitungsanteil durch Verwendung von Aerogel geringerer Dichte, doch muss dort durch die verringerte Extinktion ein erhöhter Strahlungsanteil in Kauf genommen werden. In dem sich so ergebenden Optimierungsproblem müssten auch Fragen der Festigkeit und der Transparenz miteinbezogen werden.

Da Aerogel in dem für Fenster wichtigen Temperaturbereich IR-Strahlung wirkungsvoll zurückhält, kann auf eine IR-Verspiegelung der Glasscheiben verzichtet werden. Eine erhebliche Wirksamkeit einer reduzierten Randemissivität kann erst erwartet werden, wenn zwischen Aerogel und Glasscheibe ein Luftspalt eingefügt wird, wodurch eine Entkopplung von Strahlung und Leitung eintritt.

Mit der uns zur Verfügung stehenden Aerogelqualität erzielt man bei 13 mm Dicke einen k-Wert von $0,99 \text{ W/m}^2\text{K}$ (Argon $0,89 \text{ W/m}^2\text{K}$). Wird das Fensterelement evakuiert, so sinkt der k-Wert auf $0,69 \text{ W/m}^2\text{K}$. Eine gleiche Reduktion erhält man auch in Aerogelfenster-elementen mit zwei Luftspalten (je 12 mm) und einfacher IR-Verspiegelung.

Weniger herausragend sind die optischen Eigenschaften der verfügbaren Aerogelqualität. Während sich das solare Transmissionsvermögen noch in einem zu einer IR-verspiegelten Zweischeibenverglasung vergleichbaren Rahmen bewegt, sind bei der visuellen Transparenz durch Rayleigh-Streuung gewisse Einbussen in Kauf zu nehmen. Sie führt zu einem bläulichen Schimmer vor dunklem Hintergrund; eine weiße Fläche erscheint in der Durchsicht blass gelblich, da nun ein gewisser Anteil am blauen Ende des Spektrums fehlt. Die bisher verfügbaren Aerogelblöcke vermögen daher den gewohnten hohen Ansprüchen, die heute an die visuelle Transparenz von Fenstern gestellt werden, (noch) nicht zu genügen. Denkbar ist daher vorläufig der Einsatz von Aerogel in Oberlichtern und in transparenten Wärmedämmungen.

Denselben Anwendungsbereich muss auch Aerogelgranulatfenstern zugeordnet werden, dessen Eigenschaften ebenfalls untersucht werden. So erzielten wir mit einer Aerogelgranulatschüttung von 20 mm Dicke einen k-Wert von $0,84 \text{ W/m}^2\text{K}$ (Argon $0,76 \text{ W/m}^2\text{K}$). Durch Evakuieren fällt der k-Wert auf $0,49 \text{ W/m}^2\text{K}$, wobei jetzt aber Drucke unterhalb $1/10 \text{ mbar}$ erforderlich sind, da der Knudseneffekt in den Luftzwischenräumen zwischen den Aerogelkugeln erst später eintritt.

Die Reflexion der Strahlung an den vielen Einzelkugeln führt als zusätzlicher Streueffekt dazu, dass die Durchsicht verloren geht. Darunter leidet vor allem das Transmis-

sionsvermögen im visuellen Bereich; insbesondere bei zunehmendem Einfallswinkel fällt die Transmission daher relativ rasch auf Null ab.

Der g -Wert ($g = \tau_g + q_i$) liegt bei Aerogelfenstern um 0,6. Er kann durch Verwendung von eisenarmem Glas und damit einhergehender Verbesserung der Transmission noch etwas erhöht werden.

Die bisher verfügbare Aerogelqualität zeigt zwar ausreichende Festigkeit bei reinen Druckbelastungen auf, jedoch führen Biege- und Scherbeanspruchungen leicht zum Bruch. Um Bruch zu vermeiden, sind bei Herstellung, Konstruktion, Transport und Einsatz von Aerogelfenstern entsprechende Massnahmen zu treffen.

Der abschliessende *Abschnitt 6* ist schliesslich simultanen thermogravimetrischen-massenspektrometrischen Messungen an Aerogel gewidmet. Damit können die flüchtigen Stoffarten untersucht werden, die von der bemerkenswert hohen spezifischen Oberfläche desorbiert werden. Ein Grossteil davon ist wegen seiner Polarität Wasser.

Will man das isolierende Potential von Aerogel durch Evakuieren voll nutzen, so kann das Ausgasen dieser flüchtigen Stoffarten zu erheblichen Schwierigkeiten bei der Einhaltung eines gegebenen Druckes führen: Wird Aerogel vom Rand her evakuiert, so beobachtet man lange Evakuationszeiten von Stunden und Tagen. Bestimmend für dieses Verhalten ist die Diffusion, die bei einem porösen Adsorbens wie Aerogel über zwei Kanäle erfolgen kann: Die Volumendiffusion (Gasströmung) und die Oberflächendiffusion entlang den Porenwänden. Unter gewissen Annahmen kann das Problem zurückgeführt werden auf die Lösung einer Diffusionsgleichung mit *einem* effektiven Diffusionskoeffizienten. Man erhält damit eine Abschätzung für die Ausgasungszeit bei einem gegebenen Ausgasungsgrad. Danach sollten lange Diffusionswege vermieden werden. Aerogel sollte deshalb schon vor dem Einbau in das Fenstersystem von seiner ganzen Oberfläche her evakuiert werden. Die Entgasung wird gefördert durch Erwärmung, wodurch der Bedeckungsgrad des Adsorptives innert nützlicher Frist absinkt, sofern das Aerogel von seiner ganzen Fläche her einem Medium mit niedrigem Partialdruck des Adsorptives ausgesetzt wird.

Es zeigt sich, dass atmosphärische Gase durch blosses Evakuieren entfernt werden können. Zur vollständigen Austreibung des physisorbierten Wassers sind hingegen Temperaturen gegen 100 °C notwendig. Bei höheren Temperaturen werden je nach Gasmedium auch andere Stoffarten freigesetzt. Diese stammen von herstellungsbedingten Rückständen und aus Sekundärreaktionen derselben. Für die Anwendung im Fensterbereich sind jedoch diese Temperaturen nicht von Interesse. So tritt eine Verfärbung erst bei höheren Temperaturen unter Sauerstoffmangel auf und kann auf unreaktierten Kohlenstoff zurückgeführt werden.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen beteiligten Personen und Institutionen meinen herzlichen Dank aussprechen.

Zunächst geht mein Dank an Herrn Prof. Dr. H.-J. Güntherodt, der mir die Arbeit ermöglichte und an Herrn Dr. H.P. Eicher, der mir bei der Koordination der beteiligten Firmen zur Bereitstellung der Fensterelemente half.

Das Aerogel in Kachel- bzw. Granulatform wurde von der Airglass AB bzw. der BASF grosszügig bereitgestellt. Danken möchte ich auch der Firma Glas Trösch AG, die aus diesem Rohmaterial die benötigten Fensterelemente verfertigte und den dortigen Herren Mäder und Hägler für die dazu notwendige Organisation.

Danken möchte ich auch Herrn Dr. W. Platzer am Fraunhofer-Institut für Solare Energiesysteme in Freiburg (ISE), der mir ermöglicht hat, die dortige Apparatur zur Transmissionsmessung zu benutzen.

Mein Dank geht weiter an das anorganisch-chemische Institut der Universität Zürich, wo sowohl die simultanen thermogravimetrischen-massenspektrometrischen Messungen durchgeführt wurden, als auch die REM-Aufnahmen gemacht wurden. Herr PD Dr. A. Reller gab mir dort dazu zahlreiche Ratschläge und Anregungen. Frau B. Spring und Herr P. Hug führten hier die notwendigen Messungen durch.

Die Durchführung des Projektes wurde schliesslich durch die Unterstützung der Kommission zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung KWF ermöglicht.

Literatur

- [Ale 82] Alexander, S., Orbach, R.
Density of states on fractals: "fractons"
J. Physique Lettres, Tome 43, 17, L-625 - L-631 (1982)
- [Bal 82] Balzers
Partialdruckmessung in der Vakuumtechnik
BG 800 169 PD (8304), 27, 1982
- [Bec 89] Beck, A., Gelsen, O., Wang, P., Fricke, J.
Light Scattering for Structural Investigations of Silica Aerogels and Alkogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-203 (1989)
- [Ben 84] Benguigui, L.
Experimental Study of the Elastic Properties of a Percolating System
Physical Review Letters, Vol. 53, 21, 2028-2030 (1984)
- [Bin 83] Binz, A.
Energiebewusstes Bauen mit dem Klima und der Sonne
SES-Report Nr. 13, Zürich, 1983
- [Bor 80] Born, M., Wolf, E.
Principles of optics
Pergamon Press, Oxford, 1980
- [Bou 89] Bourret, D., Sempere, R., Bouaziz, J., Sivade, A.
Use of Partially Densified Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-71 (1989)
- [Bro 86] Broecker, F.J., Heckmann, W., Fischer, F., Mielke, M., Schroeder, J.
Structural Analysis of Granular Silica Aerogels
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 160-166 (1986)
- [Bru 45] Brunnauer, S.
The Adsorption of Gases and Vapors - Physical Adsorption
Princeton University Press, Princeton, 1945
- [Cal 87] Calemczuk, R., De Goer, A.M., Salce, B., Maynard, R., Zarembowitch, A.
Low-Temperature Properties of Silica Aerogels
Europhysics Letters, **3**, 11, 1205-1211 (1987)
- [Cap 85] Caps, R.
Strahlungswärmeströme in evakuierten thermischen Superisolationen
Dissertation, Würzburg, 1985

- [Cre 84] Kremer, G.
Energiestrategien und Verteilung des Weltenergieverbrauchs
Duncker & Humblot, Berlin, 1984
- [Cod 89] Coddens, G., Vacher, R., Woignier, T., Pelous, J., Courtens, E.
A Neutron Scattering Study of the Density of States of Fractal Silica Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-151 (1989)
- [Cou 87] Courtens, E., Pelous, J., Phalippou, J., Vacher, R., Woignier, T.
Brioullin-Scattering Measurements of Phonon-Fractal Crossover
in Silica Aerogels
Physical Review Letters, Vol. 58, 2, 128-131 (1987)
- [Cou 88] Courtens, E., Vacher, R., Pelous, J., Woignier, T.
Observation of Fractons in Silica Aerogels
Europhysics Letters, **6**, 3, 245-250 (1988)
- [Dam 35] Damköhler, G.
Über die Adsorptionsgeschwindigkeit von Gasen an porösen Adsorbentien
Z. Phys. Chem., A 174, 222-238 (1935)
- [Dep 85] Deptuck, D., Harrison, J.P., Zawadzki, P.
Measurement of Elasticity and Conductivity of a Three-Dimensional
Percolating System
Physical Review Letters, Vol. 54, 9, 913-916 (1985)
- [Die 86] Dietrich, W., Schuck, G., Fricke, J.
Pore Size Distribution of Silica Systems
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 148-153 (1986)
- [Die 89] Diekmann, B., Schönwiese, C.D.
Der Treibhauseffekt
Rowohlt Sachbuch, 1989
- [Dub 70] Dubbel
Taschenbuch für den Maschinenbau
Springer-Verlag, Berlin, 1970
- [Edw 77] Edwards, D.K.
Solar Absorption by each Element in an Absorber-coverglass Array
Solar Energy, Vol. 19, 401-402 (1977)
- [Ent 84] Entin-Wohlman, O., Alexander, S., Kin-Wah, Y.
Excitation spectrum for vibrations on a percolating network:
Effective-medium approximation
Physical Review B, Vol. 29, 8, 4588-4594 (1984)

- [Fen 84] Feng, S., Sen, P.N.
Percolation on Elastic Networks: New Exponent and Threshold
Physical Review Letters, Vol 52, 3, 216-219 (1984)
- [Fra 86] Frank, T.
Oberflächentemperaturen von besonnten Fensterglasscheiben und ihre
Auswirkungen auf Raumklima und Komfort
Schlussbericht NEFF Projekt Nr. 266, Dübendorf, 1986
- [Fri 83] Fricke, J., Borst, L.
Energie - ein Lehrbuch
Oldenburg Verlag, München, 1983
- [Fri 86a] Fricke, J., Caps, R.
Radiative Heat Transfer in Silica Aerogel
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 110-115 (1986)
- [Fri 86b] Fricke, J., Caps, R., Büttner, D., Hümmer, E., Heinemann, U.
Silica aerogel - a light transmitting thermal superinsulator
High Temperatures - High Pressures, Vol 18, 517-526 (1986)
- [Fri 89a] Fricke, J., Hümmer, E., Morper, H.J., Scheuerpflug, P.
Thermal Properties of Silica Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-87 (1989)
- [Fri 89b] Fricke, J.
Neues Dreischeiben-Energiesparfenster
Physik unserer Zeit, Nr. 4, 20. Jahrg., 125-126 (1989)
- [Fur 88] Furler, R.
Experimental and theoretical studies on the energy balance of windows
Dissertation, Zürich, 1988
- [Gas 89] Gassmann, F., Weber, R.
Vom Menschen verursachte Klimaveränderungen
Klimabroschüre, Schweizerische Physikalische Gesellschaft, Zürich, 1989
- [Goe 84] Goetzberger, A., Schmid, J., Wittwer, V.
Transparente Wärmedämmung zur passiven Solarenergiegewinnung
an Gebäudefassaden
Arcus 1, 32-36 (1984)
- [Goe 86] Goetzberger, A.
Entwicklung transparenter Dämmstoffe
Sonnenenergie & Wärmepumpe, Jg 11, Nov/Dez, 16-17 (1986)

- [Gna 86] Gnan, K.H.
Glas in der passiven Solararchitektur
Bauverlag, Wiesbaden und Berlin, 1986
- [Gre 67] Gregg, S.J., Sing, K.W.S.
Adsorption, Surface Area and Porosity
Academic Press, London, 1967
- [Gri 55] Grigull, U.
Die Grundgesetze der Wärmeübertragung
Springer Verlag, Berlin, 1955
- [Gro 86a] Gronauer, M., Kadur, A., Fricke, J.
Mechanical and Acoustic Properties of Silica Aerogel
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 167-173 (1986)
- [Gro 86b] Gronauer, M., Fricke, J.
Acoustic Properties of Microporous SiO₂-Aerogel
Acustica, Vol. 59, 177-181 (1986)
- [Gro 89] Gross, J., Goswin, R., Gerlach, R., Fricke, J.
Mechanical Properties of SiO₂ Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-185 (1989)
- [Grö 89] Gröbl, W.
Strategien gegen die Klimakatastrophe
Sonnenenergie & Wärmepumpe, 14. Jg., 4, 8-10 (1989)
- [Hau 74] Hauffe, K., Morrison, S.R.
Adsorption
Walter de Gruyter, Berlin, 1974
- [Hen 90] Henning, S.
Airlglass-Silica Aerogel, A Transparent Heat Insulator
Swedish Council for Building Research, Stockholm, D7: 1990
- [Hun 84] Hunt, A.J., Berdahl, P.
Structure Data from Light Scattering Studies of Aerogel
Mat. Res. Soc. Symp., Vol. 32, 275-280 (1984)
- [Jon 85] Jonsson, B.
Heat transfer through windows
Swedish Council for Building Research, Stockholm, D13: 1985
- [Jor 84] Jorgensen, G.J., Tracy, C.E., Benson, D.K.
Laser sealed evacuated window glazings
SPIE, Vol. 502, 146-151 (1984)

- [Kag 69] Kaganer, M.G.
Thermal insulation in cryogenic engineering
Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, 1969
- [Kan 84] Kantor, Y., Webman, I.
Elastic Properties of Random Percolating Systems
Physical Review Letters, Vol. 52, 21, 1891-1894 (1984)
- [Kis 31] Kistler, S.S.
Coherent Expanded Aerogels and Jellies
Nature, Vol. 127, 741 (1931)
- [Kis 32] Kistler, S.S.
Coherent Expanded Aerogels
J. Phys. Chem. 36, 52-64 (1932)
- [Nas 83] Nassau, K.
The Physics and Chemistry of Colors
John Wiley & Sons, New York, 1983
- [Nil 86] Nilsson, O., Fransson, A., Sandberg, O.
Thermal Properties of Silica Aerogel
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 121-126 (1986)
- [Nil 89] Nilsson, O., Rüschenpöhler, G., Gross, J., Fricke, J.
Correlation between thermal conductivity and elasto-mechanical properties
of compressed porous media
High Temperatures - High Pressures, Vol 21, 267-274, (1989)
- [Pau 89] Pauthe, M., Phalippou, J.
Silica aerogels prepared by hypercritical acetone evacuation
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-215 (1989)
- [Pfl 87] Pflüger, A.
Minimal thermal conductivity of transparent insulation materials
Solar Energy Materials, 16, 255-265 (1987)
- [Pfl 88] Pflüger, A.
Spektraler Strahlungstransport in transparenten Wärmedämmungen
Dissertation, Freiburg, 1988
- [Pha 89] Phalippou, J., Woignier, T., Prassas, M.
The Aerogel Glass Conversion
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-47 (1989)

- [Pla 88] Platzer, W.
Solare Transmission und Wärmetransportmechanismen bei transparenten Wärmedämmmaterialien
Dissertation, Freiburg, 1988
- [Poe 86] Poelz, G.
Aerogel in High Energy Physics
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 176-187 (1986)
- [Ras 89] Rasmussen, I.L.
Use of SiO₂ Aerogels with $n = 1.05 - 1.25$ as Cerenkov Detectors
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-221 (1989)
- [Reb 87] Reber, G.
Bau einer Apparatur zur Messung des Wärmedurchgangskoeffizienten ebener Bauteile
Diplomarbeit, Basel, 1987
- [Rei 85] Reiss, H.
Wärmeströme in Isolationen
Spektrum der Wissenschaft, Nov , 112-125 (1985)
- [Rei 89] Reichenauer, G., Buchenau, U., Fricke, J.
Vibrational Density of States for Low-Density Silica Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-145 (1989)
- [Rub 82a] Rubin, M.
Calculating Heat Transfer through Windows
Energy Research, Vol. 6, 341-349 (1982)
- [Rub 82b] Rubin, M.
Solar Optical Properties of Windows
Energy Research, Vol. 6, 123-133 (1982)
- [Rub 83] Rubin, M., Lampert, C.M.
Transparent Silica Aerogels for Window Insulation
Solar Energy Materials, 7, 393-400 (1983)
- [Rub 87] Rubin, M., Hartmann, J., Arasteh, D.
Thermal and solar-optical properties of silica aerogel for use in insulated windows
Solar '87, 42-47 (1987)
- [Sae 86] Schaefer, D.W., Keefer, K.D.
Structure of Random Porous Materials: Silica Aerogel
Physical Review Letters, Vol 56, 20, 2199-2202 (1986)

- [Sae 89] Schaefer, D.W.
What Factors control the Structure of Silica Aerogels?
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-121 (1989)
- [Sei 83] Seidel, H., Giesbrecht, Ch., Giesbrecht, P.
Verglasungen für winterliche und sommerliche Wärmedämmung
Sonderdruck aus Architektur und Technik, 2 und 11, (1983)
- [Sel 87] Selkowitz, S.
Influence of windows on building energy use
Swedish Council for Building Research, Stockholm, 49-69 D1: 1987
- [Sie 80] Siegel, R., Howell, J.R.
Thermal Radiation Heat Transfer
Hemisphere Publishing Corporation, London, 1980
- [Sta 87] Stauffer, D.
Introduction to Percolation Theory
Taylor & Francis, London, 1987
- [Tei 68] Teichner, S.J., Nicolaon, G.A.
Bull. Soc. Chim. France, 1906 (1968)
- [Tei 86] Teichner, S.J.
Aerogels of Inorganic Oxides
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 22-30 (1986)
- [Tew 86] Tewari, P.H., Hunt, A.J., Lieber, J.G., Lofftus, K.
Microstructural Properties of Transparent Silica Aerogels
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 142-147 (1986)
- [Vac 88] Vacher, R., Woignier, T., Pelous, J., Courtens, E.
Structure and self-similarity of silica aerogels
Physical Review B, Vol. 37, 11, 6500-6503 (1988)
- [Vac 89] Vacher, R., Woignier, T., Phalippou, J., Pelous, J., Courtens, E.
On the Fractal Structure of Silica Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-127 (1989)
- [VdH 81] Van de Hulst, H.C.
Light Scattering by Small Particles
Dover Publications, New York, 1981
- [Wal 82] Walcher, W., Adam, H., Wutz, M.
Theorie und Praxis der Vakuumtechnik
Vieweg, Braunschweig, 1982

- [Woi 89] Woignier, T., Phalippou, J.
Scaling Law Variation of the Mechanical Properties of Silica Aerogels
Revue de Physique Appliquee, Tome 24, C4-179 (1989)
- [Zar 89] Zarzycki J., Woignier, T.
Aerogels: Precursors or End Materials?
Springer Proc. Phys., Vol. 6, 42-48 (1986)

Diese Arbeit und ihr Autor

Die vorliegende Arbeit entstand in den Jahren 1987-1991 am Institut für Physik (IfP) der Universität Basel in der damaligen Energiegruppe unter Prof. H.-J. Güntherodt.

Die vorgängige Diplomarbeit (1987) des Autors bildete eine wichtige Grundlage für diese Arbeit: Sie bestand im Aufbau einer Apparatur zur Messung des Wärmetransportes ebener Bauteile und somit aller Fensterkonstruktionen, die in der Dissertation (1991) untersucht wurden.

*Der Autor zehn Jahre später
(WS 2000/01) zurück am IfP
im Rahmen von Forschungs-
projekten im Energiebereich.*



Folgenden Dozenten der Universität Basel verdankt der Autor seine Ausbildung:

In Physik

K. Alder, G. Backenstoss, G. Baur, E. Baumgartner, J. Fünfschilling, U. Götz, H.-J. Güntherodt, E. Magyari, P. Oelhafen, F. Rösel, H. Rudin, R. Schilling, T. Schucan, P. Talkner, L. Tauscher, H. Thomas, D. Trautmann, R. Viollier, R. Wagner, I. Zschokke

In Mathematik

C. Bandle, N. A'Campo, W. Habicht, H. Huber, H. Kraft, B. Scarpellini

In Astronomie

R.P. Fenkhart, U.W. Steinlin, G.A. Tammann, Ch. Trefzger