

1 Einleitung

Verbrennungsprozesse auf der Basis von Kohlenwasserstoff haltigen Molekülen emittieren als Endprodukte nicht nur H_2O und CO_2 , sondern auch verschiedene andere Abgasbestandteile in geringer Konzentration, die für die Umwelt und dem Menschen gefährlich sind [1]. Die wesentlichen verbleibenden schädlichen Abgasbestandteile sind Kohlenmonoxid, Kohlenwasserstoffe, Stickoxyde, Schwefelverbindungen, Aldehyde, Ammoniak und Rußpartikel [2], [3] werden durch den Verbrennungsprozess und Wahl der Treibstoffe, z.B. schwefelarme Kraftstoffe, in ihrer Konzentration beeinflusst, deren Entstehung jedoch nicht verhindert. Wesentliche gasförmige Emissionen können teilweise katalytisch in ungefährliche Gase, wie N_2 , CO_2 und H_2O , durch Umwandlung reduziert oder beseitigt werden [4].

Die Rußemissionen durch Verbrennungsanlagen, z.B. Verbrennungsmotoren in Fahrzeugen, Biomasse Verbrennung für Heizungen in Häusern, oder im Reformer für Brennstoffzellen, liefern einen Beitrag für die Belastung der Atmosphäre mit Feinstäuben [3], der Größenklasse $PM_{2.5}$ [3]. Die größte gesundheitliche Gefährdung des Menschen besteht in Städten durch den Straßenverkehr, wenn fossile Brennstoffe als Energieträger verwendet werden. Diese Erkenntnis führte vor ca. 20 Jahren zum Einbau von Rußpartikelfiltern in den Abgasstrang von Verbrennungsmotoren. Um den Betrieb dieser Filter gewährleisten zu können, müssen diese periodisch durch Abbrennen des abgelagerten Rußes regeneriert werden [5].

Es gibt verschiedene Methoden, diese Reinigungsprozedur zu starten, es muss jedoch sicher erkannt werden, wann die zulässige Rußmenge erreicht ist. Für diese Aufgabe ist ein Rußsensor erforderlich, der im Abgasstrang vor dem Partikelfilter kontinuierlich den Rußeintrag in Abhängigkeit von der Fahrweise des Fahrzeugs misst.

Des Weiteren liefert die Messung von Ruß im Abgas von Verbrennungsmotoren ein Kriterium für die Qualität der Verbrennung [6] in Bezug auf den Wirkungsgrad des Motors [7], [8] für die Belastung der Umwelt [9], [10], [11] und die Gesundheit der Menschen [12], so dass eine Kontrolle der Rußemissionen im laufendem Betrieb sinnvoll ist.

1.1 Motivation

Im Jahr 2002 wurde eine Dissertation [13] mit dem Thema: „Ein Sensor zur Messung der Rußkonzentration im Abgas von Dieselmotoren“ abgeschlossen und ein Patent hierzu erteilt [14]. Es erfolgte die Anwendung dieses Sensorprinzips in unterschiedlichen Ausführungsvarianten und Umgebungsbedingungen:

- On-Board-Diagnose (OBD), eingebaut in einem PKW (VW Golf) und Durchführung von Straßenfahrten [15] und Vergleichsmessungen an Prüfständen [16].

- Eine robuste Variante des Sensors wurde in zwei unterschiedlich motorisierte Radlader zur Überwachung des Partikelfilters eingesetzt und in 1200 m Tiefe im Schacht Konrad betrieben [17].
- Eine weitere Variante bestand in der Ausführung von zwei stromabwärts angeordneten Doppelsensoren in einem portablen Rußmessgerät.

Während der vergangenen 18 Jahre wurden durch gesetzliche Vorgaben der europäischen Union [18], die Grenzwerte von Emissionen des Verbrennungsmotors drastisch abgesenkt, so dass die messtechnische Erfassung der Rußemission vor und nach dem Partikelfilter, gegenüber dem Stand der Technik im Jahr 2002, von dem bisherigen Messverfahren nach Smolenski [13] nicht mehr geleistet werden kann.

Das Problem, das sich nur bei niedrigen Rußkonzentrationen zeigt, kann in Abbildung 1.1 betrachtet werden. Die Messdaten zeigen beim Übergang von niedriger zu höherer Rußkonzentration eine Hysterese. Mit niedriger Emission beginnend, liegen die Messgrößen bei 1,4 und 2,8 mg/m³ auf der unteren Ausgleichskurve. Von einer hohen Konzentration ausgehend, liegen die Messgrößen bei gleicher Rußkonzentration, um den Faktor 5 höher, auf der oberen Ausgleichskurve.

Dieses Verhalten wird vom Verfasser genauer untersucht, da dieses Rußladungsverfahren, ohne Lösung dieses Problems, bei niedrigen Rußkonzentrationen, nicht angewendet werden kann.

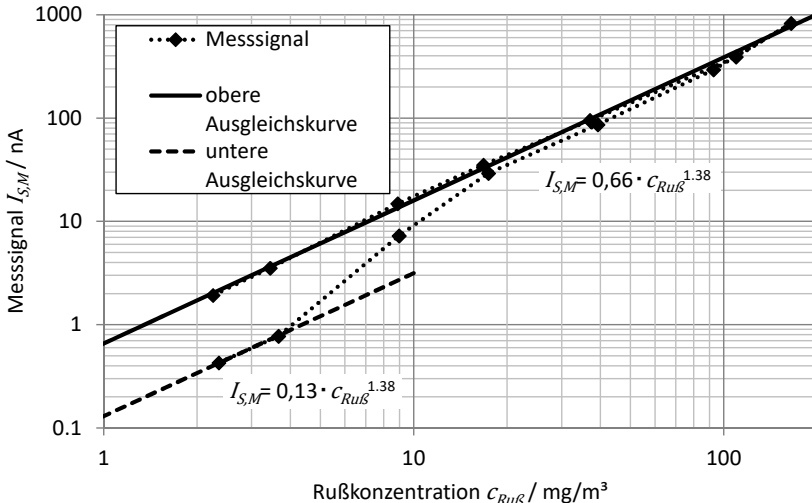


Abbildung 1.1: Gemessene Hysterese des Rußsensors nach Smolensky [13], [19]

Nach der Demontage des Sensors werden unterschiedliche Rußablagerungen an den Sensorelektroden festgestellt, die in einem Zusammenhang mit den messtechnischen Beobachtungen stehen.

Die bisherigen technischen Veränderungen des Sensors basieren im Wesentlichen auf Beobachtungen des messtechnischen Verhaltens, wie z.B. Anstiegs- und Abklingzeit des Messsignals sowie der Elektrodenverschmutzung. Zur Reduzierung der Verschmutzung wird der Gleichspannung der Hochspannungselektrode eine mittelfrequente Wechselhochspannung überlagert, die Elektroden als Drahtgitter ausgebildet und mit Teflon beschichtet, um das Zeitverhalten sowie die Hysterese des Messsignals (siehe Abbildung 1.1) zu reduzieren. Im Jahr 2013 wurde für diese ergänzenden Maßnahmen ein europäisches Patent erteilt [20].

Die theoretischen Zusammenhänge zu ergründen, ist Motivation für diese Arbeit. Es wird erwartet, dass die bisherigen Beobachtungen durch die mathematische Modellierung der Vorgänge im Sensor erklärt werden können und die gewonnenen Erkenntnisse den Einsatz dieses Messverfahrens bei kleinen Rußkonzentrationen ermöglichen.

1.2 Aufgabenstellung

Die Eigenschaften von Rußpartikeln werden in einem mathematischen Modell abgebildet. Die Bewegungen der Rußpartikel und die Vorgänge des Ladungstransportes unter Einfluss des statischen, inhomogenen elektrischen Feldes werden berechnet, wobei Einflüsse durch die Parameter des Trägergases berücksichtigt werden.

Das physikalische Funktionsprinzip des Sensors wird mit Hilfe von ergänzenden Versuchen erarbeitet und die in Abbildung 1.1 beschriebene Hysterese des Sensors erklärt.

Das Funktionsprinzip wird in ein mathematisches Modell überführt und mit einem für diese Untersuchungen hergestellten Sensor (siehe Abbildung 6.2) durch Messungen am Motorprüftand verifiziert.

Als Ergebnis wird erwartet, dass die gefundenen Zusammenhänge die Möglichkeit ergeben, das Rußladungs-Messverfahren bezüglich der Messempfindlichkeit und des monotonen Verhaltens des Messsignalverlaufs (keine Hysterese des Signalverlaufes) zu verbessern.

2 Stand der Partikelmesstechnik

Es gibt viele Verfahren und Einrichtungen, die Partikel messen können [21], so dass, in Bezug auf das hier diskutierte Verfahren, eine Auswahl getroffen wird. Es werden Verfahren vorgestellt, die vorwiegend Ruß im Abgas von motorischen Verbrennungsprozessen messen [22].

Messverfahren, die Rußemissionen quantisieren, werden grundsätzlich auf die Rußmassenkonzentration in $\text{mg}/\text{m}^3\text{N}$ [23] oder auf die Rußanzahlkonzentration in $1/\text{m}^3\text{N}$ bezogen [18].

Dabei gibt es nur wenige Verfahren, die die Partikelmasse direkt ermitteln [24]. Ein Beispiel für die direkte Massenbestimmung ist ein Verfahren, bei dem die Änderung der Eigenfrequenz eines Feder-Masse-Systems eine elektrische Messgröße liefert. Die Vergrößerung der Masse des Systems erniedrigt die Resonanzfrequenz, die gemessen und ausgewertet wird. Ein Beispiel ist die Verwendung von Biegeschwingern im kHz-Bereich [25].

Viele Rußmessverfahren, zu denen auch das hier diskutierte zählt, werden auf Partikelmasse kalibriert und benötigen grundsätzlich eine auf Masse bezogene Vergleichsmessung, um genormte Messvorschriften zu erfüllen.

Die Ermittlung der Partikelmassenkonzentration erfolgt konventionell durch Beladen eines konditionierten, gewogenen Filters mit Ruß, wobei der durch das Filter geleitete Abgasstrom gleichzeitig volumetrisch, unter Einbeziehung der Temperatur und des Drucks, erfasst wird. Nach einer gewissen Beobachtungszeit, die sich nach der Intensität der Rußemission richtet, wird der Filter erneut konditioniert und die Massenänderung vor und nach der Beladung mit Ruß ausgewogen. Unter Einbeziehung des Abgasvolumens, der Temperatur und des Drucks erfolgt die Berechnung des Ergebnisses in $\text{mg}/\text{m}^3\text{N}$.

Dieses gravimetrische Referenzverfahren enthält Unwägbarkeiten in Bezug auf die Rußqualität. Bei dem motorischen Verbrennungsprozess unter hohem Gasdruck und hohen Temperaturen in den Zylindern entstehen auch chemische Verbindungen, die an der Rußoberfläche anhaften oder mit Kohlenstoff reagieren [26]. Das hat zur Folge, dass „Soot“ gemessen wird und nicht elementarer Ruß [27]. Diese statischen Verfahren sind für Untersuchungen der Rußemission bei dynamischen Fahrzyklen der Motoren nicht geeignet.

2.1 Ausgewählte Rußmessverfahren

2.1.1 Schwärzungszahl

Ein mobiles und robustes Verfahren, das eine gute Korrelation zu der gravimetrischen Messung von Ruß aufweist, ist die Schwärzungszahl, genannt: Bosch-Verfahren. Mit Hilfe eines durch Federkraft belasteten Kolbens einer Pumpe wird ein bestimmtes Abgasvolumen mit einer bestimmten Geschwindigkeit durch ein Papierfilter gesaugt. Der auf der Oberfläche abgeschiedene Ruß verfärbt das Papier in unterschiedlichen Grau-Stufen, je nach Rußemission, die durch Auflichtreflexion beurteilt und mit Hilfe einer gravimetrischen

Vergleichsmessung kalibriert wird [28]. Die Technische Regel für Gefahrstoffe TRGS 554: „Abgase von Dieselmotoren“ der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin (BAuA) schreibt dieses Messverfahren bei der Wartung von Bergbau Maschinen vor [29].

2.1.2 Fotoakustisches Messverfahren

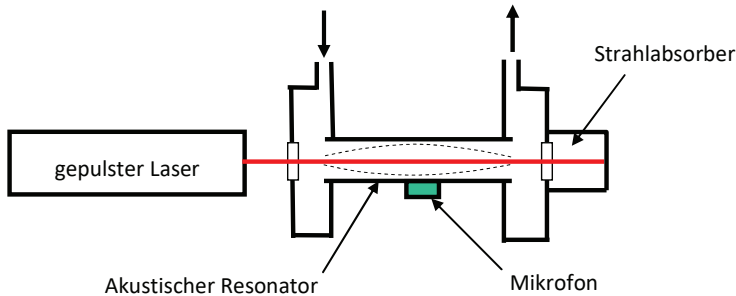


Abbildung 2.1: Prinzip des fotoakustischen Messverfahrens

Das in Abbildung 2.1 skizzierte fotoakustische Messverfahren [30] ist weit verbreitet, da das Messsignal physikalisch direkt proportional zur Summe der Partikelwärmekapazitäten, und somit zur Summe der Partikelmasse ist.

Ein Laser wird mit der Resonanzfrequenz eines akustischen Resonators gepulst. Trifft der Laserstrahl auf Partikel im Strahlengang, so werden diese erhitzt. Die Temperaturdifferenz erzeugt eine Erwärmung des umgebenden Gases, das sich dadurch ausdehnt. Da der Eintrag von Wärmeenergie durch einen gepulsten Laser erfolgt, dessen Pulsfrequenz auf die akustische Resonanz des Rohres abgestimmt ist, entsteht durch abwechselndes Aufheizen und Abkühlen eine Resonanzschwingung. In der Mitte des Rohres ist der Wechseldruck maximal und wird an dieser Position mit einem Mikrofon aufgenommen und als Effektivwert in Korrelation zu der momentanen Rußkonzentration ausgewertet.

Das fotoakustische Verfahren wird mit Hilfe einer gravimetrischen Messung kalibriert.

Die Anwendung dieses Verfahrens für Abgasuntersuchungen bei Verbrennungsmotoren unterliegt starken Einschränkungen, bezogen auf die Beeinflussung der akustischen Resonanzschwingung [31].

Um die Ausbildung der Gassäulenschwingung durch Umgebungsparameter nicht zu beeinflussen, ist es erforderlich, die Dichte des Gases und den Volumenstrom konstant zu halten.

Des Weiteren wird das Abgas in einen „Verdünnungstunnel“ geleitet und mit Umgebungsluft gemischt, deren Volumenstrom und Dichte (Druck, Temperatur) konstant gehalten wird. Die Abgasverdünnung ist auch erforderlich, um Kondenswasser im Messgerät zu verhindern und den Messbereich für größere Partikelmassenkonzentrationen zu erweitern.

2.1.3 Laser Induced Incandescence Soot Analyser (LI²SA)

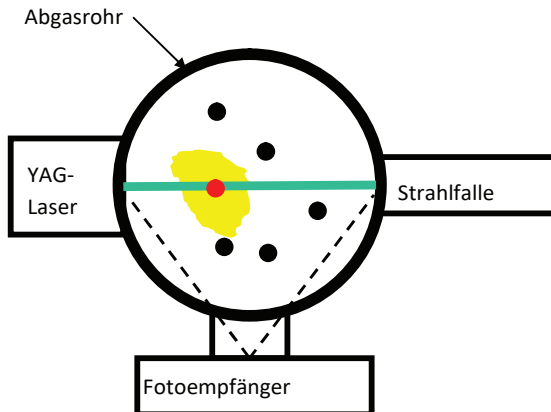


Abbildung 2.2: Prinzip des LI²SA Verfahrens

Bei dem in Abbildung 2.2 skizzierten Verfahren werden die Partikel, die in den Strahl eines Hochleistungslasers gelangen, verdampft. Die dabei abgegebene Planck'sche Strahlung wird von einem schnellen Frequenz selektiven Fotoempfänger registriert und einer Spektralanalyse zugeführt.

Die „in-situ“ Auswertung ermöglicht die Bestimmung von Partikelgröße und Partikelmassenkonzentration bzw. Rußkonzentration und der spezifischen Oberfläche der Primärpartikel (siehe Kapitel 3.1.2).

Ein Verfahren, das im Vollstrom eingesetzt wird, aber aufgrund des Messaufwandes nur bedingt für die OBD geeignet ist.

Bei Verwendung einer wassergekühlten Messeinrichtung können Messungen im Abgasrohr auch vor einem Partikelfilter durchgeführt werden [32], [33], [34].

Die Messeinrichtung wird mit Hilfe eines Rußgenerators (Combustion Aerosol Standard) in einer Vergleichsmessung kalibriert.

2.1.4 Streulichtverfahren

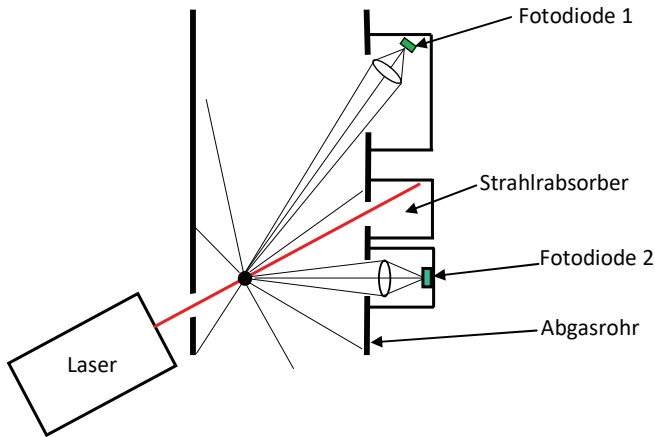


Abbildung 2.3: Prinzipskizze zur Funktionsweise eines Streulichtmessgerätes

Die Messung des Streulichts ist eine verbreitete Methode. Es gibt verschiedene Ausführungen von Streulichtgeräten [35], [36]. Das einfachste Messgerät misst die Streuung unter einem Winkel von 90° in Relation zum Laserstrahl und erfasst mit einem Hohlspiegel einen weiten Streubereich und fokussiert das Licht in einen Detektor. Dieses Messverfahren hat die Einschränkung, dass der erfasste kleinste Partikeldurchmesser von der Wellenlänge des Laserlichtes abhängig ist.

Durch Auswertung des Streuungs- und Beugungsspektrums der Rußpartikel unter verschiedenen Winkeln, können auch kleinere Partikel untersucht werden. Zum Beispiel wird durch die Auswertung zwei bestimmter Winkel ein gutes Messergebnis erreicht [37].

2.1.5 Rußladungsverfahren nach Pegasor

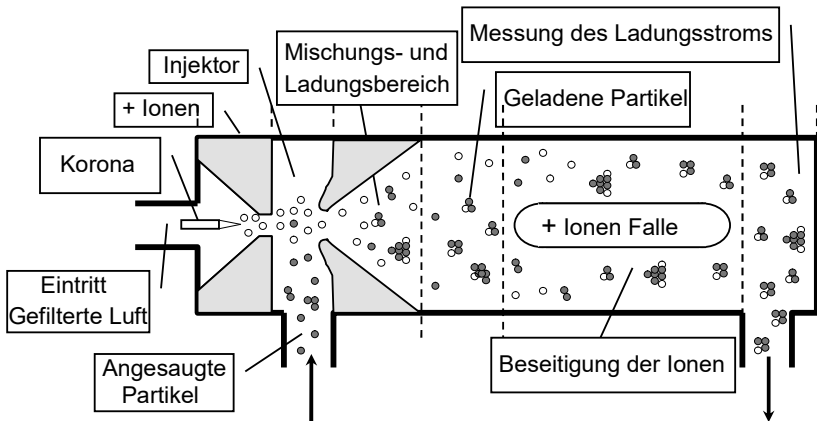


Abbildung 2.4: Prinzipskizze des Rußladungsmessverfahrens nach Pegasor [38].

Gefilterte Druckluft wird durch Korona positiv ionisiert. Das Abgas wird angesaugt, mit den positiven Ionen gemischt und verdünnt. Dieser Prozess wird „Diffusion Charging“ genannt und erzeugt eine definierte Ladungsverteilung bei den Partikeln, die in der Summe nicht Null ist.

Der Großteil der Ionen fällt auf das geerdete Gehäuse des Sensors aber eine kleine Menge lagert sich an die Partikel an und gibt beim Verlassen des Sensors eine Ladung ab. Diese Ladung entspricht der Partikelkonzentration im Abgas [39].

Der Sensor wurde auch bei der Verarbeitung von Nano-Glaspartikeln mit Erfolg eingesetzt.[40].

2.1.6 Mobilität geladener Partikel

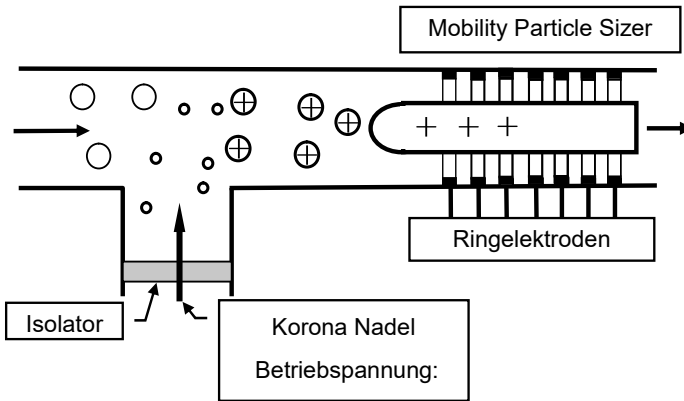


Abbildung 2.5: Prinzipskizze eines Fast Mobility Particle Sizer (FMPS) [41]

Mit Hilfe einer Korona werden definiert freie Ladungsträger erzeugt und mit dem zu vermessenden Aerosol vermischt.

Positiv geladene Partikel werden längs einer positiven Elektrode geführt und abgestoßen. Je nach Mobilität erreichen sie Ringelektroden, deren Signale zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung sowie der Partikelanzahl- und Massenkonzentration ausgewertet werden.

Die Probenahme in das Gerät erfolgt durch einen Bypass-Abgasstrom. Dabei wird eine Kondensatbildung durch Aufheizen der Messeinrichtung und / oder durch Verwendung eines Verdünnungstunnels verhindert.

2.1.7 Resistiver Partikelsensor

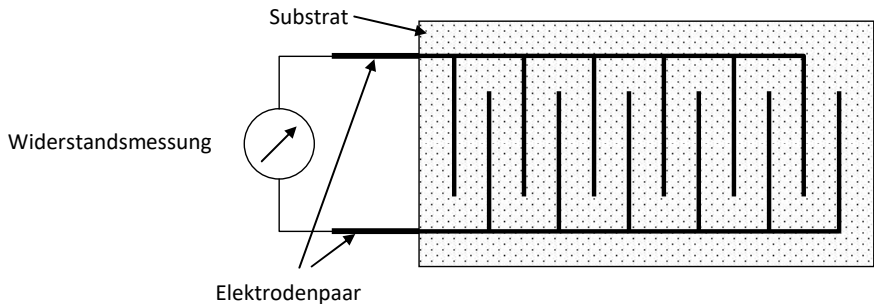


Abbildung 2.6: Prinzipskizze der Interdigitalelektrode eines resistiven Partikelsensors

Bei diesem Sensorprinzip werden auf einen beheizbaren Keramikträger z.B. zwei kammförmige Leiterbahnen aufgebracht. Setzen sich Rußpartikel auf der Oberfläche ab, so bilden sich elektrisch leitende Rußbrücken zwischen den Leiterbahnen und verändern den Widerstand zwischen den beiden Kammelektroden. Der sich ändernde Widerstand wird als Messsignal ausgewertet. Bei Unterschreitung eines minimalen Widerstandes muss der Sensor durch Verbrennen der Rußablagerungen regeneriert werden, um die Messung neu starten zu können [42].

Diese Partikelsensoren werden hauptsächlich zur Überwachung von Rußfiltern im PKW verwendet. Durch Variationen des Elektrodenmaterials [43] und durch Optimierung der Sensorspannung [44] konnte die Ansprechzeit dieses Messprinzips verbessert werden.