

## Kurzfassung

Zur Einhaltung der Grenzwerte für Partikelemissionen im Verkehrssektor sind Partikelfiltersysteme unumgänglich. Deren Betriebsverhalten hängt jedoch wesentlich von den Eigenschaften der eingelagerten Ruß- und Ascheteilchen ab. Das betrifft insbesondere die Filterregeneration, bei welcher die eingelagerten Rußpartikel oxidiert werden. Bei einer besseren Kenntnis über den Beladungszustand von Partikelfiltern und die Eigenschaften der abgeschiedenen Partikel können Regenerationsprozesse effizienter gestaltet werden. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, den Einfluss von motorischen Betriebsbedingungen auf die Charakteristik von Ruß- und Ascheeinlagerungen in Partikelfiltern und die Folgen für die Rußoxidation bzw. die Regeneration des Filters systematisch herauszustellen.

Aufgrund der physikalischen und chemischen Vielfalt von Partikeln aus Verbrennungsprozessen wird eine Vielzahl an Mess- und Analysemethoden eingesetzt, um Rückschlüsse aus den Partikeleigenschaften auf das Oxidationsverhalten und damit auch die Regeneration von Partikelfiltern ziehen zu können. Die Validierung dieser einzelnen Methoden zur Charakterisierung der Partikel wird mit kontaminationsfreien Proben aus der Verbrennung von Propan durchgeführt.

Zur Bewertung des Betriebsverhaltens eines Dieselpartikelfilters werden in dieser Arbeit zunächst grundlegende Untersuchungen vorgestellt und deren Übertragbarkeit auf anwendungsnahe Experimente an einem Motorprüfstand geprüft. Dabei zeigt sich, dass unterschiedliche motorische Betriebsbedingungen, welche zu einer Variation der Eigenschaften der emittierten Partikel und des vorliegenden Abgasmassenstroms führen, einen signifikanten Einfluss auf die Beladung und auch die Regeneration aufweisen. Insbesondere das Regenerationsverhalten der Filter wird hinsichtlich der Dauer und der Temperaturen innerhalb des Filters maßgeblich durch die Partikeleigenschaften beeinträchtigt. Das zeigt sich unter anderem an exothermen Oxidationsprozessen, die unter gewissen Voraussetzungen zu kritischen Temperaturgradienten innerhalb des Filters führen können. Generell machen die Experimente zum Oxidationsverhalten den Einfluss der katalytischen Filterbeschichtung, der Partikelmorphologie sowie der Anwesenheit von flüchtigen Komponenten deutlich.

Die unumgängliche Ansammlung von nicht-oxidierbaren Bestandteilen innerhalb des Filters stellt einen weiteren Faktor dar, der mit zunehmender Filterlebensdauer an Bedeutung gewinnt. Daher werden erstmals experimentelle Untersuchungen zum Einfluss von Ascheeinlagerungen auf das Betriebsverhalten von Partikelfiltern dargestellt. Analytische und bildgebende Untersuchungen veranschaulichen die Zusammensetzung und Verteilung der eingelagerten Asche innerhalb des Filters. Die weiterführenden Untersuchungen am Prüfstand zeigen zudem den deutlichen Einfluss auf das Regenerationsverhalten, der allerdings weniger auf katalytische Effekte der anorganischen Elemente zurückzuführen ist als vielmehr auf die lokal inhomogene Einlagerung von Ruß und Asche im Filter.

## Abstract

In order to comply with the limit values for particle emissions in the transport sector, particulate filter systems are indispensable. However, their operating behavior depends essentially on the properties of the deposited soot and ash. This is especially relevant for the regeneration of the filter where the deposited soot particles are oxidized. With a better knowledge of the loading state of particulate filters and the properties of the deposited particles, regeneration procedures can be processed more efficiently. The aim of the present work is to highlight the influence of engine operating conditions on the characteristics of soot and ash deposits in particulate filters and the consequences for the soot oxidation and the regeneration of the filter.

Due to the physical and chemical diversity of particles from combustion processes, a variety of measurement and analysis methods is applied to draw conclusions about the influence of the particle properties on the oxidation behavior and thus the regeneration of particulate filters. The validation of these methods for the individual characterization of the particles is carried out with samples from the combustion of propane that are free of contaminations.

For the evaluation of the operating behavior of diesel particulate filters, initial fundamental investigations are presented in this work and their transferability to application-oriented experiments performed on an engine test bench is considered. It turns out that different engine operating conditions, which lead to a variation of the properties of the emitted particles and the exhaust gas mass flow, have a significant influence on the loading and the regeneration behavior. In particular, the regeneration behavior of the filter is significantly affected by the particle properties in terms of the duration and the temperatures within the filter. This is particularly visible by exothermic oxidation processes, which, under certain circumstances, can lead to critical temperature gradients within the filter. In general, the experiments of the oxidation behavior reveal the influence of a catalytic filter-coating, the particle morphology and the presence of volatile components.

The unavoidable accumulation of non-oxidizable components within the filter is another factor that gains in importance with increasing filter life. Therefore, experimental studies on the influence of ash deposits on the performance of particulate filters are presented. Analytical and imaging studies illustrate the composition and distribution of the deposited ash. Further studies performed on the test bench also show the clear influence on the regeneration behavior, which, however, is less due to catalytic effects of the inorganic elements than to the locally inhomogeneous deposition of soot and ash within the filter.

# 1 Einleitung und Problemstellung

Die Bedeutung der individuellen Mobilität hat in den letzten Jahren stark zugenommen. Die Anzahl der Neuzulassungen von Personenkraftwagen (Pkw) steigt weltweit und der Absatz von Dieselaautos ist trotz der Abgasaffäre und drohender Fahrverbote nur leicht rückläufig [1]. Mit einem Anteil von 39 % an den Neuzulassungen im Jahr 2017 nimmt der Dieselmotor im Pkw-Bereich noch immer eine wichtige Rolle ein. In den Segmenten der Mittelklasse, der oberen Mittelklasse, der Geländewagen, Vans und Nutzfahrzeuge werden weiterhin deutlich mehr dieselpetriebene Fahrzeuge abgesetzt als andere Antriebe [2]. Laut einer aktuellen Studie des Bundesministeriums für Verkehr und digitale Infrastruktur (BMVI) wird in den kommenden Jahren eine Zunahme des Straßengüterverkehrs, in dem der Dieselantrieb noch immer bestimmend ist, erwartet [3]. Durch die Verbrauchsvorteile und die damit niedrigeren CO<sub>2</sub>-Emissionen wird der Dieselmotor auch in Zukunft noch immer ein wichtiger Faktor zur Erreichung der Flottendurchschnittswerte für neu zugelassene Fahrzeuge sein. Auch die Einführung von Fahrverboten hätte wohl lediglich zur Folge, dass in Zukunft nur noch dieselpetriebene Fahrzeuge in den Innenstädten zulässig sind, die mit einer erforderlichen Abgasnachbehandlung die Abgasbestimmungen einhalten können.

Ein maßgebendes Merkmal der dieselmotorischen Verbrennung ist, neben den vermehrt auftretenden Stickoxid-Emissionen aufgrund der thermodynamischen Bedingungen im Brennraum, die vermehrte Bildung von Partikeln durch die inhomogene Verbrennung.

Khan [4] hatte sich bereits im Jahr 1969 mit dem Einfluss von Einspritzmustern und Drehzahlen auf die Rauchgaskonzentration im Abgas eines Einzylinder-Dieselmotors beschäftigt. Zum damaligen Zeitpunkt stand Dieselrauch im Fokus, weil er sichtbar war und Leistungseinbußen vermutet worden sind. Ein signifikanter Beitrag zur Luftverschmutzung oder Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit sind damals ausgeschlossen worden.

Ab Mitte der 80er-Jahre haben sich erste Studien mit erhöhten Sterblichkeitsraten in urbanen Gebieten mit besonders viel Smog beschäftigt [5–8]. Dabei ist jedoch stets von erhöhter Luftverschmutzung die Rede. Ein direkter Zusammenhang mit Partikeln konnte nicht eindeutig belegt werden, da auch andere Schadstoffe mit einbezogen worden sind. Erst in den darauffolgenden Jahren sind Studien [9–11] durchgeführt worden, die sich direkt mit dem Einfluss von Partikeln aus Verbrennungsprozessen auf die Umwelt und die menschliche Gesundheit befassen. Mit der Weiterentwicklung von Verbrennungsmotoren sind die emittierten Partikel im Laufe der Zeit immer kleiner geworden. Das hat letztlich dazu geführt, dass Nanopartikel für den Menschen als potenziell krebserregend eingestuft worden sind, da sie aufgrund ihrer Größe bis in die Lungen und den Blutkreislauf gelangen können [12–15].

Vor diesem Hintergrund sowie der zunehmenden Umweltbelastung haben sich die Gesetzgeber zu einer Limitierung der Abgasemissionen aus Dieselmotoren entschlossen. Die ersten Limitierungen für Partikel aus Dieselmotoren sind in Teilen Europas im Jahr 1988 mit der Richtlinie 88/436/EWG eingeführt worden. In Europa sind die ersten gültigen Grenzwerte

im Jahr 1992 mit der Abgasnorm Euro 1 in Kraft getreten. Seit jeher haben sich diese Limitierungen stetig verschärft, was dazu geführt hat, dass Grenzwerte für Partikelanzahl und Partikelmasse von Pkw, Nutzfahrzeugen und Lastkraftwagen mit Dieselmotor ohne zusätzliche Abgasnachbehandlungsmethoden kaum eingehalten werden können [16]. Noch relativ neu ist die Thematik für Ottomotoren mit Systemen zur Benzindirekteinspritzung, für die zur Einhaltung der aktuellen Abgasnorm Euro 6 ebenfalls Grenzwerte für die emittierte Partikelanzahl in Betracht gezogen werden müssen.

Um Partikel aus dem motorischen Abgas abzuscheiden, werden Partikelfilter in den Abgasstrang integriert. Dieselpartikelfilter (DPF) fanden in Europa erstmals im Jahr 2000 eine serienmäßige Anwendung im Straßenverkehr. Der Konzern PSA setzte die Abgasnachbehandlungskomponente in einem Peugeot 607 ein. Seither sind Dieselpartikelfilter die bevorzugte Methode, um aktuelle und zukünftige Abgasnormen für Partikelmasse und -anzahl einzuhalten. Trotz der effektiven Reduzierung der Rußemissionen durch die Verwendung eines Partikelfilters werden die Hersteller von Motoren, Abgasnachbehandlungssystemen und auch Schmierölfabrikanten vor neue Herausforderungen gestellt.

Während der Beladung werden die Partikel in der Filterstruktur abgeschieden, was zu einer Erhöhung des Strömungswiderstands führt. Wenn dieser einen bestimmten Wert überschreitet, muss der Filter regeneriert werden, da der erhöhte Gegendruck eine Verringerung des Motorwirkungsgrades sowie einen erhöhten Kraftstoffverbrauch zur Folge hat und in Extremfällen sogar zu Motorschäden führen kann. Die Regeneration wird durch eine gezielte Erhöhung der Abgastemperatur mittels zusätzlicher Kraftstoffeinspritzung eingeleitet. Dadurch werden die abgeschiedenen Partikel oxidiert, während gleichzeitig mehr Kraftstoff verbraucht wird. Generell ist ein Regenerationsprozess mit effizienter Rußoxidation, geringen Temperaturgradienten im Filter sowie möglichst wenig zusätzlichem Kraftstoffverbrauch anzustreben.

Dieses Regenerationsverhalten ist allerdings noch zu großen Teilen unbekannt, da es durch eine Reihe von Einflussgrößen bestimmt wird. Zudem gibt es kaum Studien zur Langzeitstabilität von Filtern. Diese sind deswegen relevant, da mit zunehmender Lebensdauer nicht oxidierbare Bestandteile im Filter zurückbleiben und das Betriebsverhalten maßgeblich beeinflussen. Zudem wird die thermische Kontrolle während der Regeneration in Zukunft zunehmend an Bedeutung gewinnen, da die stetige Weiterentwicklung zu effizienteren Brennverfahren eine Absenkung der Abgastemperatur zur Folge hat.

In der vorliegenden Arbeit sollen die Einflüsse von dieselmotorischen Betriebsbedingungen auf Eigenschaften der Partikeleinlagerungen in einem DPF anhand von optischen und analytischen Methoden untersucht werden. Zudem soll anwendungsnah an einem Motorenprüfstand ermittelt werden, ob und in welcher Form diese unterschiedlichen Partikel-Eigenschaften das Regenerationsverhalten beeinträchtigen. Für die Untersuchungen werden neben neuen Filtern auch gealterte Filter mit erhöhten Ascheanteilen verwendet. Daraus lassen sich Rückschlüsse auf die Langzeitstabilität sowie das veränderte Betriebsverhalten mit zunehmender Lebensdauer der Filter ziehen.

## 2 Grundlagen und Stand der Forschung

Für das bessere Verständnis der Zusammenhänge, die im Rahmen dieser Arbeit auftreten, werden im folgenden Kapitel zunächst die themenrelevanten Grundlagen vorgestellt. Dabei wird kurz auf die dieselmotorische Verbrennung und die daraus resultierenden Abgasemissionen eingegangen. In Kapitel 2.2 erfolgt die detaillierte Betrachtung der Partikelemissionen, die im Fokus dieser Arbeit stehen. Hierbei wird auf die Größe, die Struktur und die Bestandteile der Dieselpartikel sowie auf deren Bildung, auch in Hinblick auf unterschiedliche motorische Betriebsparameter, eingegangen. In Abschnitt 2.3 werden die Funktionsweise von Dieselpartikelfiltern, insbesondere die Einlagerungs- und Abscheidungsprozesse von Partikeln, sowie die Abläufe während der Filterregeneration und die Einflüsse durch aschehaltige Bestandteile erläutert. Der theoretische Hintergrund zu den Rußoxidationsprozessen im Allgemeinen, deren Übertragbarkeit auf den Regenerationsvorgang von Partikelfiltern und eine Möglichkeit zur formalkinetischen Beschreibung wird in Kapitel 2.4 vorgestellt.

### 2.1 Mehrkomponentensystem Dieselabgas

#### 2.1.1 Dieselmotorische Verbrennung

Bereits im Jahr 1893 erhielt Rudolf Diesel das Patent auf das Design für einen damals innovativen Verbrennungsmotor. Das Konzept beruht darauf, den Verbrennungsprozess durch die Einleitung von Kraftstoff in heiße und verdichtete Luft auszulösen. Die ersten Dieselmotoren sind zunächst nur in stationären Anwendungen eingesetzt worden. Der Einsatz für den Antrieb von Kraftfahrzeugen wurde erst in den 1930er-Jahren, bei zunächst nur geringem Interesse, umgesetzt. Als sich in den 1960er-/1970er-Jahren die Kraftstoff-Direkteinspritzung für Dieselmotoren aufgrund von Verbrauchsvorteilen durchgesetzt hatte, nahmen auch die Neuzulassungen zu. Die stetige Weiterentwicklung der Einspritzung in Kombination mit Abgasturboaufladung, Ladeluftkühlung und Abgasrückführung in den nachfolgenden Jahren führten zu einer sparsameren und saubereren Dieselerverbrennung [17].

Das grundlegende Prinzip der dieselmotorischen Verbrennung ist jedoch bis heute weitestgehend gleichgeblieben. Die Luft wird während des Kompressionstaktes im Brennraum des Hubkolbenmotors auf bis zu 55 bar verdichtet. Dadurch erhöht sich die Temperatur im Zylinder auf bis zu 900 °C [18]. Der Kraftstoff wird mit einem Einspritzdruck von bis zu 2500 bar fein zerstäubt in die heiße Luft eingespritzt. Durch die anliegenden hohen Temperaturen kommt es zur Selbstzündung des Dieselkraftstoffs und der Verbrennungsprozess wird eingeleitet. Der dieselmotorische Verbrennungsvorgang lässt sich in eine Vielzahl von Teilprozessen untergliedern, die weitestgehend simultan ablaufen und in Wechselwirkung

miteinander stehen. Diese Teilprozesse lassen sich aufteilen in Einspritzung, Tropfenzerfall, Tropfenverdampfung, Selbstzündung, Verbrennung und Schadstoffbildung.

Da der Fokus dieser Arbeit jedoch klar auf die Partikelemissionen und deren Nachbehandlung gelegt wird, wird auf eine weitere ausführliche Beschreibung der Grundlagen der dieselmotorischen Verbrennung verzichtet. An dieser Stelle sei daher auf die gängige Literatur verwiesen [18–21].

### 2.1.2 Zusammensetzung von Dieselabgas

Ständiger Begleiter in der Diskussion um die dieselmotorische Verbrennung sind die daraus entstehenden Emissionen. Dieselabgas besteht zu einem großen Teil aus den Komponenten Stickstoff ( $N_2$ ), Sauerstoff ( $O_2$ ), Wasserdampf ( $H_2O$ ) und Kohlenstoffdioxid ( $CO_2$ ). Bei realen Verbrennungsprozessen treten jedoch auch Produkte einer unvollständigen Verbrennung, wie unverbrannte Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxid (CO), sowie unerwünschte Nebenprodukte wie Stickoxide ( $NO_x$ ), Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) und Partikel auf.

In Abbildung 1 ist exemplarisch eine beispielhafte Abgaszusammensetzung für einen Dieselmotor ohne Katalysator dargestellt. Dabei gilt es jedoch zu beachten, dass die tatsächliche Abgaszusammensetzung je nach Motortyp, Emissionszertifizierungsstufe, Kraftstoffzusammensetzung und motorischen Betriebspunkten stark variieren kann. Aus der Abbildung ist ersichtlich, dass der Schadstoffanteil nur einen sehr geringen Gesamtanteil ausmacht. Aufgrund seines Gefährdungspotenzials für Mensch und Umwelt spielen alle aufgelisteten Schadstoffe dennoch eine bedeutende Rolle.

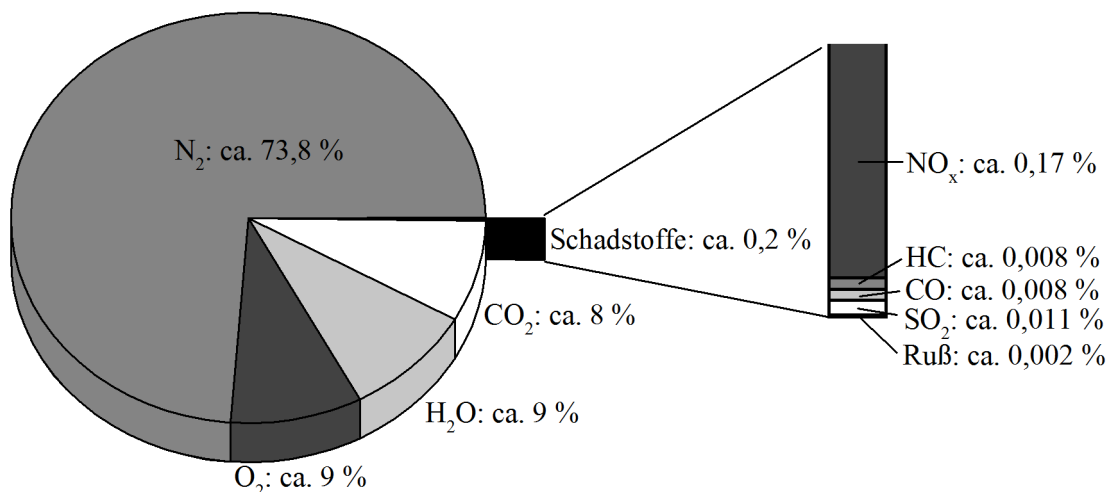


Abbildung 1: Beispielhafte Zusammensetzung von Dieselabgas (Zahlenwerte nach Merker et al. [20])

Schwefeloxide werden durch die Oxidation des im Kraftstoff vorhandenen Schwefels gebildet. Sie wirken sich ungünstig auf das Korrosionsverhalten des Motors sowie die Ab-