

Konzeptuntersuchung von Abgasnachbehandlungssystemen dieselbetriebener Nutzfahrzeuge im Hinblick auf zukünftige Gesetzgebungen mit Fokus auf NO_x-Emissionen

Georg Kaufmann, BSc

Graz, Dienstag, 12. Februar 2019

Georg Kaufmann, BSc

Konzeptuntersuchung von Abgasnachbehandlungssystemen
dieselbetriebener Nutzfahrzeuge im Hinblick auf zukünftige
Gesetzgebungen mit Fokus auf NO_x-Emissionen

Masterarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades

Diplomingenieur

in

Verfahrenstechnik

eingereicht an der

Technischen Universität Graz

Betreuer:

Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Matthäus Siebenhofer

TU Graz (ICVT)

Dr.techn. Hannes Noll

AVL

Masterarbeit
für
Georg Kaufmann

Aufgabenstellung

Im Zuge der Arbeit soll zunächst eine Literaturstudie zu state-of-the-art Katalysator-technologien für die Nachbehandlung von Diesel-Abgasen erfolgen. Anschließend wird in Matlab Simulink™ eine simulationsbasierte Studie mittels AVL-Modellen durchgeführt. In dieser Studie sollen verschiedene innovative Konzeptlayouts für Abgasnachbehandlungssysteme dieselbetriebener Nutzfahrzeuge, auf ihre Fähigkeit künftige Abgasnormen zu erfüllen, getestet werden. Zur Bewertung der Abgasnachbehandlungskonzepte werden verschiedene gesetzliche Szenarien, wie sie in kommenden Jahren in Kraft treten können, herangezogen. Das Hauptaugenmerk der Studie wird auf die NO_x-Konvertierungsleistung der verschiedenen Systeme im realen Fahrbetrieb (In Service Conformity) gelegt. Die Ergebnisse der Simulationen sollen einen Vorschau auf die Konfiguration von Abgasnachbehandlungssystemen für künftige Gesetzgebungen (EURO VI D, EURO VI E) liefern.

Deutsche Fassung:

Beschluss der Curricula-Kommission für Bachelor-, Master- und Diplomstudien vom 10.11.2008

Genehmigung des Senates am 1.12.2008

EIDESSTATTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen/Hilfsmittel nicht benutzt, und die den benutzten Quellen wörtlich und inhaltlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Graz, am
.....
(Unterschrift)

Englische Fassung:

STATUTORY DECLARATION

I declare that I have authored this thesis independently, that I have not used other than the declared sources / resources, and that I have explicitly marked all material which has been quoted either literally or by content from the used sources.

Graz,
.....
date (signature)

Vorwort

Im Rahmen meiner Tätigkeit als studentischer Mitarbeiter in der AVL List GmbH, welche ich seit 2016 ausüben durfte, wurde in mir ein Interesse am Thema Abgasnachbehandlung geweckt. Die Umwelttechnik stellte ebenso in meinem Masterstudium einen wichtigen Schwerpunkt dar. Durch jüngst veröffentlichte Gesetzesentwürfe zur Gewährleistung von Emissionsstandards hat sich schließlich ein interessantes Thema aufgetan, welches folglich im Zuge dieser Arbeit untersucht werden konnte.

Ich möchte mich bei allen Kollegen in der AVL und an der TU Graz bedanken, welche zum erfolgreichen Abschluss der Masterarbeit beigetragen haben. Besonderer Dank gilt dabei meinen Betreuern Dr. Hannes Noll (AVL) und Prof. Matthäus Siebenhofer (ICVT TU Graz), welche maßgeblich zum reibungslosen Ablauf der Arbeit beigetragen haben.

Ebenfalls möchte ich mich bei meinem Sitznachbarn DI Patrick Egarter für die zahlreichen interessanten Diskussionen über diverse Probleme, welche im Laufe der Arbeit auftraten, bedanken. Großen Dank möchte ich ebenfalls an Dott. Mag. Daniele Corsini für die Unterstützung bei der Motorsimulation und an DI Gérard Silberholz (IVT, TU Graz) für die Hilfestellungen mit VECTO aussprechen.

Zu guter Letzt gilt mein Dank meiner Familie, welche mich in meiner Studienlaufbahn stets unterstützt hat, sei es durch die Bereitstellung von fahrbaren Untersätzen, Mikrowellen oder die Versorgung mit Essbarem. Vielen Dank!

Georg Kaufmann

Graz, Februar 2019

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der SCR basierten NO_x -Reduktion im Abgas von Diesel-Nutzfahrzeugen. Im Zuge der Arbeit werden unterschiedliche Konzeptsysteme im WHTC und im realen Fahrbetrieb (In Service Conformity; kurz ISC) analysiert. Es wird die geltende Gesetzeslage zur Regulierung von Emissionen in Europa diskutiert und ein Vorausblick auf die 2020 in Kraft tretende EURO VI E Norm gegeben. EURO VI E bringt speziell für den Nachweis von Emissionen im realen Fahrbetrieb zahlreiche Änderungen mit sich. So werden beispielsweise zukünftig Kaltstarts in die Emissionsbewertung miteinbezogen. Neben dieser Verschärfung werden auch Partikelanzahlmessungen als Bewertungskriterium für ISC-Tests eingeführt. In der Arbeit wird ein 40 t LKW mit zwei unterschiedlichen Motorisierungen mit Nennleistungen von 220 und 331 kW untersucht. Seit EURO VI C (01.01.2017) müssen Fahrzeuge in einem Beladungsbereich von 10-100 % gültige Emissionen nachweisen können. Um für beide untersuchten Leistungsvarianten vorschriftsmäßige ISC-Tests generieren zu können, mussten insgesamt sechs verschiedene Strecken mit Längen zwischen 91 und 203 km definiert werden.

Die Simulation des Fahrzeuges sowie die Definition der ISC-Teststrunden wurde in VECTO durchgeführt. Zur Simulation von Motor und Abgasnachbehandlungssystem wurden Matlab Simulink™ basierte Modelle von AVL verwendet. Das Motormodell bildet einen Motor mit einem Hubvolumen von 2 Litern pro Zylinder mit AGR und VTG ab. Das NO_x -Emissionsniveau des Motors liegt bei rund 5 g/kWh.

Derzeit typische Abgasnachbehandlungssysteme im Nutzfahrzeugsektor setzen sich aus DOC (Diesel Oxidation Catalyst), DPF (Dieselpartikelfilter), Harnstoffdosiereinheit, SCR-Katalysator und ASC (Ammonia Slip Catalyst) zusammen. Die kommerziell gängigsten SCR-Technologien sind Beschichtungen aus Eisen, Kupfer und Vanadium. Im Zuge der Arbeit wird die Performance zweier Kupfer SCR-Beschichtungen und einer Vanadium Beschichtung in einer simulationsbasierten Studie analysiert. Vier verschiedene Konzeptsysteme werden untersucht und durch die Variation von Schlüsselparametern optimiert. Der Aufbau von System 1 entspricht dem oben aufgeführten Standard-System. Beim zweiten System handelt es sich um ein SDPF System. System 3 und 4 haben jeweils zwei SCR-Stufen, wobei sich die erste SCR-Stufe bei System 3 nahe am Motorauslass und bei System 4 unmittelbar vor dem DOC befindet.

Die Anwendung einer kupferbasierten SCR-Technologie führte in den Simulationen zu den höchsten NO_x-Konvertierungsraten. Im WHTC ist das zweistufige System mit der motornahen, ersten SCR-Stufe aufgrund seiner guten Kaltstartperformance in der Lage, die niedrigsten NO_x-Emissionen zu erzielen. Unter Anwendung von Heizmaßnahmen in den ersten 900 s des Zyklus können damit NO_x-Emissionen von 0.04 g/kWh erreicht werden. Dies entspricht einem Drittel der Emissionen des Referenzsystems in der Bestkonfiguration.

Die Bewertung der Systeme in den ISC-Tests hat gezeigt, dass bei niedrigen Fahrzeugbeladungen Heizmaßnahmen angewendet werden müssen. Ohne Applikation von Heizmaßnahmen sind die Abgastemperaturen im Stadtteil der ISC-Testrunden bei Fahrzeugbeladungen von 10 und 25 % zu niedrig, um die Konvertierung von NO_x zu ermöglichen. Mit den in der Simulationsstudie geltenden Rahmenbedingungen hat sich das Erreichen einer durchschnittlichen Abgastemperatur > 210 °C im Stadtteil der ISC-Runden als nötig erwiesen, um möglichst geringe Conformity-Faktoren zu erzielen. Die Auswertung der ISC-Tests nach EURO VI D hat zu Conformity-Faktoren in einem Bereich von 0.02-0.5 geführt. Die niedrigsten Ergebnisse erzielte dabei das SDPF-System. Durch die Berücksichtigung der Kaltstartphase nach EURO VI E steigen die Conformity-Faktoren leicht an. Es ergeben sich Werte zwischen 0.05 und 0.7. Durch den Einfluss des Kaltstarts erreicht nach EURO VI E das zweistufige System mit der motornahen, ersten SCR-Stufe die niedrigsten Conformity-Faktoren. Die in der Simulationsstudie erhaltenen Resultate decken sich mit Messwerten von realen Fahrzeugen aus der Klasse N₃.

Abstract

This thesis focuses on SCR-based NO_x-reduction for diesel-driven commercial vehicles. The NO_x-conversion efficiency of different exhaust aftertreatment system (EAS) concepts is investigated in the European transient dynamometer schedule (WHTC) and under real driving conditions (ISC) for current and future European legislation. A new stage of the currently active EURO VI emission standard called EURO VI E will enter into force in 2020. EURO VI E will include significant changes to the ISC test procedure: the evaluation of particulate number emissions as well as vehicle cold start will be mandatory for the first time through EURO VI E.

In this work a 40-t truck with two different engines (rated power of 220 and 331 kW) was investigated. Using VECTO (Vehicle Energy Consumption Tool), a total of 6 ISC test trips were defined to meet all legislative requirements. The length of the trips ranges from 91 to 203 km depending on the power rating and vehicle payload. The simulation of the engine and aftertreatment was conducted in a Matlab Simulink™ based simulation environment utilizing the AVL model database. The engine model is based on an engine with a displacement of 2 liters per cylinder that is using VGT (variable-geometry turbocharger) and EGR (exhaust gas recirculation) and boasts a NO_x emission level of roughly 5 g/kWh. The EAS model is fully modular and therefore allows to investigate different system setups.

A total of four different EAS layouts was analyzed in the simulation study with system one being a EURO VI reference system consisting of DOC, DPF, SCR and ASC. System two features an SDPF instead of the standard particulate filter. Systems three and four contain an additional SCR-stage which is placed near the turbocharger outlet for system three and directly upstream the DOC for system four. Different SCR technologies were considered in the EAS simulation study. Amongst those were two Cu-based catalysts and one V-based catalyst. Through variation of SCR technology and substrate volumes the EAS configurations were optimized in the WHTC. Lowest emissions could be achieved by system three when utilizing a copper-based SCR-catalyst due to its' high capability to convert NO_x after system cold starts. When applying thermal management measures NO_x emissions of 0.04 g/kWh can be achieved by system three. This corresponds to one third of the emissions from the EURO VI reference system.

Simulations of the ISC tests indicate that the application of thermal management is required for tests at low vehicle payloads. At vehicle payloads of 10 and 25 % no valid test results can be reached without applying heating measures due to low exhaust temperature in the tests' urban section. Average temperatures > 210 °C are required to allow sufficient NO_x conversion rates in the urban section of the ISC tests. ISC NO_x conformity factors from 0.02 to 0.5 were reached when evaluating simulation results for EURO VI D, with the lowest results being achieved by the SDPF system. An evaluation according to EURO VI E lead to conformity factors between 0.05 and 0.7. A maximum increase of 0.45 between EURO VI D and E can be observed for the reference system. In total EURO VI D and E CF-results of all investigated systems are well below the limit of 1.5 when thermal management is applied at low vehicle payloads.

Inhalt

1	Einleitung	1
2	Theoretischer Hintergrund.....	3
2.1	Schadstoffemissionen des Dieselmotors	3
2.1.1	Kohlenstoffmonoxid und -dioxid (CO und CO ₂).....	3
2.1.2	Stickstoffoxide (NO _x)	4
2.1.3	Kohlenwasserstoffe (HC)	5
2.1.4	Schwefel	6
2.1.5	Partikuläre Emissionen, Ruß.....	8
2.2	Katalysatoren.....	10
2.2.1	Grundlagen	10
2.2.2	Wirkungsweise eines Katalysators am Beispiel der katalytischen Oxidation von CO an einem Pt-Katalysator	11
2.2.3	Katalytische Materialien und Trägerstoffe	13
2.2.4	Verteilung einer katalytischen Komponente auf ihrem Trägerstoff .	15
2.2.5	Chemische und physikalische Schritte der heterogenen Katalyse .	16
2.2.6	Selektivität, Umsatz und Ausbeute.....	19
2.3	Das Abgasnachbehandlungssystem.....	21
2.3.1	DOC	22
2.3.2	DPF	24
2.3.3	SCR	28
2.3.4	ASC.....	38
2.4	Gesetzgebung	41
2.4.1	Die EURO Abgasnorm	41
2.4.2	WHTC und WHSC	43
2.4.3	In Service Conformity (ISC).....	46
3	Simulationsumgebung und Durchführung	54
3.1	Die Test-Matrix	54
3.2	Fahrzeugsimulation in VECTO	57
3.2.1	Definition des Fahrzeuges	57
3.2.2	Erstellung der ISC-Testrunden.....	59
3.3	Motorsimulation	64
3.4	Simulation des Abgasnachbehandlungssystems.....	66
3.4.1	Das Modell – Komponenten und Funktionen	66
3.4.2	Die Konzeptsysteme	67
3.4.3	Simulationsmatrix WHTC	70
3.5	Auswertungsmethode	72

3.5.1	WHTC	72
3.5.2	ISC-Tests	73
4	Ergebnisauswertung	75
4.1	Bewertung der Systemperformance im WHTC	75
4.1.1	Einfluss der variierten Parameter im WHTC.....	75
4.1.2	Zusammenfassung der Bestsysteme	83
4.2	Vergleich der Konzeptlayouts im realen Fahrbetrieb (ISC)	85
4.2.1	Applikation von Heizmaßnahmen im ISC	85
4.2.2	Auswertung der ISC-Runden	88
4.2.3	Abgleich der Ergebnisse mit Messdaten	94
4.3	Diskussion und Interpretation	96
5	Zusammenfassung.....	98
6	Verzeichnis.....	i
6.1	Literatur.....	i
6.2	Abbildungen.....	ii
6.3	Tabellen.....	v
6.4	Symbole und Abkürzungen.....	vi
6.4.1	Abkürzungen	vi
6.4.2	Indizes tiefgestellt.....	vii
7	Anhang.....	viii
7.1	Fahrzeugklassen in der EU.....	viii
7.2	Geschwindigkeits- und Geländeprofile der generierten ISC-Testrunden	ix
7.3	Performance Plots der zur Simulation verwendeten Substrate.....	xii
7.3.1	DOC	xii
7.3.2	DPF	xiii
7.3.3	SDPF	xiv
7.3.4	SCR	xv
7.3.5	ASC.....	xvi
7.4	Conformity-Faktoren der ISC-Runden nach EURO VI D und EURO VI E	xvii

1 Einleitung

In den letzten Jahrzehnten wird dem Umweltschutz immer größere Bedeutung zugemessen. Besonders Emissionen von Dieselmotoren wurden in den letzten Jahren als problematisch identifiziert. Daher wurden von der Europäischen Union bereits 1970 erste Emissionslimitierungen etabliert und diese nach und nach verschärft.

Derzeit gilt die EURO VI Abgasnorm, welche den Ausstoß von Kohlenwasserstoffen, Kohlenstoffmonoxid, Stickstoffoxiden (NO_x) und partikulären Emissionen reguliert. Auf Grund ihrer stark gesundheitsschädlichen Wirkung liegt besonderer Fokus auf Stickstoffoxidemissionen (NO_x). Die Einhaltung der Emissionsgrenzwerte wird derzeit am Prüfstand in gesetzlichen Zyklen und im realen Fahrzeugbetrieb (In-service Conformity) vom Gesetzgeber überprüft.

Gegenwärtig setzt sich ein typisches Diesel-Abgasnachbehandlungssystem (kurz AGN) zur Erfüllung der EURO VI Norm aus Oxidationskatalysator, Partikelfilter, Urea-Dosiereinheit, SCR-Katalysator und Ammoniak-Schlupf-Katalysator zusammen. Durch künftige Verschärfungen der Gesetzgebung, die mit EURO VI D oder EURO VI E in absehbarer Zeit in Kraft treten werden, müssen sowohl motorseitig als auch abgasnachbehandlungsseitig innovative Konzepte erprobt werden, um auch diesen strikteren Vorgaben zu entsprechen.

Als Maßnahmen zur Effizienzsteigerung von Abgasnachbehandlungssystemen in Bezug auf NO_x Umsatz können Partikelfilter mit zusätzlicher SCR-Funktionalität (SDPF) oder eine zusätzliche SCR-Stufe als erste Komponente des Abgasnachbehandlungssystems eingesetzt werden. Mit Hilfe dieser Konfigurationen kann ein vollständiger Umsatz der Stickstoffoxidemissionen (SCR Light-Off) schneller erreicht werden, da die thermische Masse und Trägheit der dem SCR vorgelagerten Komponenten umgangen wird. Dies führt besonders nach Kaltstarts und im Schwachlastbetrieb zu höherem NO_x -Umsatz, da die zur SCR-Reaktion benötigten Temperaturen am ersten SCR-Katalysator schneller erreicht werden können.

Die Systeme, die in der vorliegenden Arbeit bewertet werden sollen, sind ein EURO VI Referenzsystem, ein System mit einer zusätzlichen SCR-Stufe und ein SDPF-System. Im Zuge der Arbeit soll das Verhalten dieser Abgasnachbehandlungssysteme vor allem im realen Fahrbetrieb (In Service Conformity) analysiert werden.

Durch Einsatz von state-of-the-art Katalysatortechnologien und einer Variation der Katalysatorgröße sollen diese Systeme simulationsbasiert optimiert werden. Die Simulationen werden in Matlab Simulink™ durchgeführt.

Die Inputdaten für die Simulation des Abgasnachbehandlungssystems werden mit Hilfe eines Motormodells generiert. Motor und Abgasnachbehandlungssystem sind in separaten Modellen abgebildet.

Es werden verschiedene Szenarien bezüglich Emissionsgrenzwerte in Betracht gezogen und die getesteten Abgasnachbehandlungssysteme nach ihrer Fähigkeit, diese zu erfüllen, bewertet.

Die Ergebnisse der Simulationen sollen einen Vorausblick auf die Konfiguration von Abgasnachbehandlungssystemen für zukünftige Gesetzgebungen (EURO VI D, EURO VI E) liefern.

2 Theoretischer Hintergrund

Im folgenden Kapitel wird der theoretische Hintergrund der Arbeit erläutert. Es wird auf die Schadstoffemissionen von Dieselmotoren, die Grundlagen der heterogenen Katalyse, den Aufbau von Diesel-Abgasnachbehandlungssystemen und gesetzliche Vorgaben im Nutzfahrzeugsektor eingegangen.

2.1 Schadstoffemissionen des Dieselmotors

Das folgende Kapitel liefert eine Zusammenfassung der relevantesten Schadstoffe aus dem Verbrennungsvorgang. Es werden deren Entstehung, sowie Reduktionsmaßnahmen diskutiert.

2.1.1 Kohlenstoffmonoxid und -dioxid (CO und CO₂)

CO

Bei vollständiger Verbrennung ($\lambda \geq 1$; λ : Verhältnis von tatsächlich verfügbarer Luftmenge zu stöchiometrisch benötigter Luftmenge) von Kohlenwasserstoffen entsteht als Hauptprodukt CO₂. CO₂ ist ebenfalls das Endprodukt unterschiedlicher Prozesse der Abgasnachbehandlung. In geringer Konzentration bildet sich bei einer Verbrennung mit $\lambda \geq 1$ auch CO. Wenn Luftmangel vorliegt ($\lambda < 1$), können Kohlenwasserstoffe nicht mehr vollständig zu CO₂ oxidiert werden, weshalb vorwiegend CO entsteht.¹ Aufgrund seiner Toxizität – vor allem für Lebewesen – werden CO-Emissionen vom Gesetzgeber limitiert.² In Abgasnachbehandlungssystemen wird Kohlenstoffmonoxid über den DOC (Diesel Oxidation Catalyst) zu Kohlenstoffdioxid oxidiert.

CO₂

Aufgrund des Treibhauspotentials von CO₂ steigt durch weltweit hohe Emissionen die Mitteltemperatur an der Erdoberfläche kontinuierlich an. Daher wird nach Lösungen

¹ (Rudolf Pischinger, 2009)

² (Sams, 2016)

zur Verringerung des globalen CO₂-Ausstoßes gesucht. Im Verkehrssektor ist vor allem die Reduktion des Kraftstoffverbrauches und die damit einhergehende Effizienzsteigerung von Antrieben zielführend. Dazu kommen innermotorische Maßnahmen, kohlenstoffarme Brennstoffe, Elektrifizierung und Optimierungen im Fahrbetrieb zum Einsatz.²

2.1.2 Stickstoffoxide (NO_x)

Unter dem Sammelbegriff „NO_x“ werden NO und NO₂-Emissionen zusammengefasst. Diese entstehen durch Dissoziation und Bindung von Stickstoff- und Sauerstoffmolekülen in der Verbrennungsluft.² Hauptsächlich bildet sich im Verbrennungsmotor NO und nur ein geringer Anteil an NO₂ (~10 % von NO_x).¹ Da N₂ ein sehr stabiles Molekül ist, sind für dessen Dissoziation und folglich auch für die Bildung von Stickstoffoxiden Temperaturen von 1800 – 2000 °C notwendig. Neben Hochtemperaturprozessen können sich Stickstoffoxide auch durch die Oxidation von stickstoffhaltigen Verbindungen bilden. Emittiertes Stickstoffmonoxid wird in der Atmosphäre durch Einwirkung von UV-Strahlung größtenteils in Stickstoffdioxid umgewandelt. Daher werden NO_x-Emissionen ausschließlich als NO₂ ausgewiesen. NO₂ ist ein Reizgas, welches eine geringe Wasserlöslichkeit besitzt und daher bei Lebewesen über die Atemwege tief in die Lunge eindringen kann. Dort kann NO₂ Zellen angreifen und Entzündungsprozesse verursachen. Daher müssen Stickstoffoxide im Abgas gemessen und Emissionen auf gesetzlich vorgeschriebene Grenzwerte reduziert werden.²

NO_x-Emissionen können durch Veränderung des Verbrennungsvorgangs verringert werden. Da Stickstoffoxide erst bei hohen Temperaturen entstehen, bietet sich durch Minderung der Verbrennungstemperatur ein Potential zur NO_x-Reduktion. Diese Temperaturabsenkung kann beispielsweise durch Ladeluftkühlung, Abgasrückführung (AGR) oder durch Wassereinspritzung erzielt werden. Bei Einsatz von AGR oder Wassereinspritzung wird die Temperaturabsenkung durch die Erhöhung der spezifischen Wärmekapazität und einen gleichzeitig auftretenden Verdünnungseffekt im Brennraum erzielt.²

Eine weitere Stellgröße zur NO_x -Reduktion bietet eine anfängliche Verlangsamung der Verbrennung. Beim Umsetzen dieser Maßnahme wird die Einspritzdauer des Kraftstoffes verlängert oder die anfängliche Einspritzrate verringert. Beides führt zu weniger NO_x -Emissionen, bei gleichzeitiger Reduktion des Wirkungsgrades der Verbrennung.²

Um gültige Grenzwerte der EURO-Abgasnorm erreichen zu können, müssen zusätzlich zu innermotorischen Reduktionsmaßnahmen katalytische Abgasnachbehandlungssysteme eingesetzt werden. Für typische innermotorische NO_x -Emissionen werden von Abgasnachbehandlungssystemen im Moment Konvertierungsraten von 90-95 % in den gesetzlich relevanten Testprotokollen gefordert, um geltende Limits zu erreichen. Derzeit eingesetzte Systeme sind in der Lage diese Konvertierungsraten zu erzielen. Für künftige Gesetzgebungen, wie die CARB-Verordnung mit NO_x -Grenzwerten von 0.03 g/kWh, sind Konvertierungsraten > 99.5 % nötig. Das Erreichen von Umsatzraten dieser Größenordnung stellt eine große Herausforderung an die Entwicklung dar. Insbesondere im realen Fahrbetrieb, in dem auch die Emissionen während der Startphase des Verbrennungsmotors berücksichtigt werden, sind die Komponenten des Abgasnachbehandlungssystems zu kalt, um eine ausreichende Konvertierung zu gewährleisten. Die Berücksichtigung der Emissionen direkt nach dem Fahrzeug-Kaltstart stellt eine Herausforderung dar, der nur durch Änderung der Konfiguration des Abgasnachbehandlungssystems beizukommen ist.²

2.1.3 Kohlenwasserstoffe (HC)

Kohlenwasserstoffe werden hauptsächlich bei unvollständiger Verbrennung ($\lambda < 1$) emittiert. Die chemische Zusammensetzung der Kohlenwasserstoffe im Abgas ähnelt jener des Brennstoffes. Im Abgas befinden sich aber auch umgewandelte und zum Teil oxidierte Komponenten. In Sonderfällen, beispielsweise bei Zündaussetzern, kann auch die Konzentration an unverbrannten Kohlenwasserstoffen im Abgas hohe Werte annehmen.¹ Vor allem aromatische HC-Verbindungen im Abgas haben krebserregende Eigenschaften. Zusammen mit Stickstoffoxiden können sich aus ihnen, unter Einwirkung von Sonneneinstrahlung, schleimhautreizende Verbindungen bilden. Weiters sind Kohlenwasserstoffe an der Bildung von Sommersmog mitbeteiligt. Aufgrund dieser Tatsachen werden HC-Emissionen als kritisch betrachtet und sind gesetzlich reguliert.²

Als wesentliche innermotorische Maßnahme zur Senkung von HC-Emissionen gilt, dass die Verbrennung in allen Lastpunkten so stabil und vollständig wie möglich ablaufen muss. Dadurch werden je nach Verbrennungskonzept Kompromisse erforderlich, was speziell in Bezug auf NO_x -Emissionen einen Trade-off herbeiführt. Durch Low- NO_x -Verbrennungen treten vor allem im Niedriglastbereich Kohlenwasserstoffe als kritische Emissionskomponente in den Vordergrund. In Abbildung 2-1 ist dieser HC/ NO_x -Trade-off für einen Nutzfahrzeugmotor mit einem Hubvolumen von 2 l pro Zylinder dargestellt. Niedrigere Temperaturen im Brennraum, welche die NO_x -Bildung senken, gehen mit einer Verlangsamung der Verbrennung einher. Dadurch können Kohlenwasserstoffe nicht mehr rechtzeitig umgesetzt werden, wodurch bei niedrigen NO_x -Emissionen die emittierte Menge an Kohlenwasserstoffen ansteigt.²

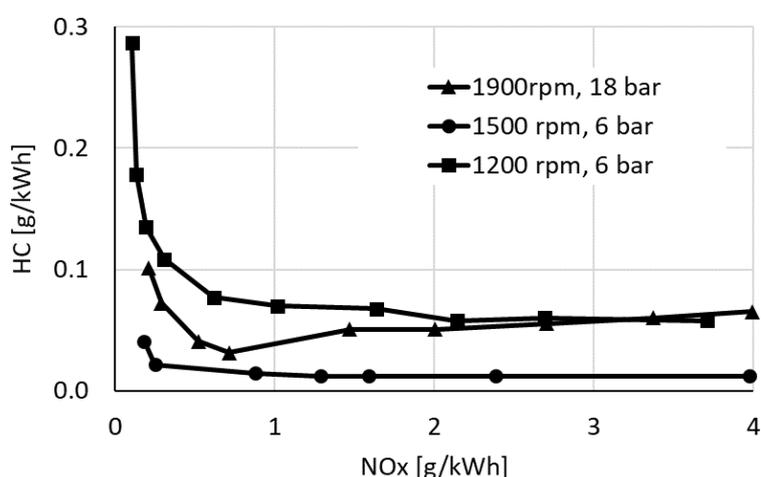


Abbildung 2-1 HC- über NO_x -Emissionen eines NFZ Motors für charakteristische Lastpunkte²

2.1.4 Schwefel

Schwefelverbindungen im Abgas haben ihren Ursprung im Kraftstoff. Moderne Kraftstoffe weisen Schwefelgehalte < 10 ppm auf. Hauptsächlich entsteht bei der Verbrennung SO_2 . Emissionen von Schwefelverbindungen werden vor allem durch den Schwefelgehalt im Kraftstoff beeinflusst.¹ Massenanteile von Schwefel in Kohle oder Erdöllagerstätten bewegen sich im Bereich von 1 – 5 %. Je höher der Schwefelgehalt in einer Verbindung ist, desto höher ist auch deren Siedepunkt. Daher reichern sich bei der Raffination von Erdölen die schwefelhaltigen Verbindungen besonders in der Schwerfraktion an. Tabelle 2-1 stellt typische Schwefelanteile, sowie Siedetemperaturen unterschiedlicher Erdölprodukte dar.²

Brennstoff	Siedetemperatur	Schwefelgehalt
Gas, Flüssiggas, CH ₄ – C ₄ H ₁₀	bis 0 °C	<<
Rohbenzin	bis 200 °C	bis 0.05 %
Mitteldestillate (Kerosin, Heizöl extra leicht, Diesel)	175 - 350 °C	0.2 – 0.8 %
Atmosphärischer Rückstand, schweres Heizöl	>350 °C	1 – 3 %

Tabelle 2-1 Typische Schwefelgehalte von Erdölprodukten; Angaben in Massenprozent²

Bei der Verbrennung emittiertes Schwefeldioxid bildet in der Atmosphäre schwefelhaltige Aerosole. Diese haben einen starken Einfluss auf das Strahlungsgleichgewicht in der Erdatmosphäre und beeinflussen dadurch auch das Klima. Bei Pflanzen werden außerdem auf zellulärer Ebene viele stoffwechselphysiologische Auswirkungen beobachtet, welche schlussendlich zum Absterben von Pflanzen führen können. Der Schwefelgehalt in Kraftstoffen ist gesetzlich limitiert. Für Schwefelemissionen direkt gibt es allerdings keine Begrenzung. Schwefelkomponenten lagern sich im Abgas in Partikeln an, und sind somit indirekt durch Emissionsgrenzwerte für Partikel im weitesten Sinne beschränkt.²

Zusätzlich zur Umweltbelastung stellen Schwefelemissionen aufgrund ihrer Wirkung als Katalysatorgift auch Probleme für Abgasnachbehandlungssysteme dar. Der Einfluss von Schwefel auf die im Nachbehandlungssystem eingesetzten Katalysatoren wird im Kapitel 2.3 genauer erläutert. Um die Funktion der Abgasnachbehandlung zu garantieren müssen Kraftstoffe einen möglichst geringen Schwefelgehalt aufweisen. Kraftstoffe, welche heute im europäischen Raum verwendet werden, sind bereits so gut entschwefelt, dass der Primäranteil des Schwefels im Abgas aus dem Motoröl stammt. In Mitteleuropa liegt der Schwefelgehalt im Kraftstoff durchschnittlich im Bereich von 3 – 5 ppm. In Osteuropa beispielsweise ist jedoch mit einem höheren Schwefelanteil im Treibstoff zu rechnen. Dies muss besonders beim Fernverkehr berücksichtigt werden. Abgasnachbehandlungssysteme müssen kurzzeitig höhere Schwefelkonzentrationen handhaben können, ohne permanente Leistungseinbußen zu erfahren.²

2.1.5 Partikuläre Emissionen, Ruß

Bei Rußemissionen handelt es sich um reinen Kohlenstoff. Dieser wird bei Dieselmotoren hauptsächlich in Form von Partikeln ausgestoßen.¹ Ruß bildet sich lokal im Brennraum, wenn bestimmte Rahmenbedingungen erfüllt sind. Zur Entstehung sind fette Stellen (hohes Brennstoff/Sauerstoff-Verhältnis) bei mittleren bis hohen Verbrennungstemperaturen nötig. Laut chemischem Gleichgewicht bildet sich Ruß ab lokalen Luftverhältnissen von $\lambda < 0.33$. Im realen Betrieb wird dem Kohlenstoff in der Brennkammer durch vorliegenden Wasserstoff der Sauerstoff entzogen. Dadurch setzt die Rußbildung bereits bei $\lambda < 0.7$ ein. Ein Teil des gebildeten Rußes wird bei hohen Temperaturen und bei ausreichender Sauerstoffverfügbarkeit wieder verbrannt. Da bei modernen Motoren, zumeist infolge von AGR-Maßnahmen und gewollt niedrigen Verbrennungstemperaturen, der Rußabbrand nur mehr eingeschränkt funktioniert, muss die Rußbildung vorwiegend über die Einspritzung reduziert werden. Um erhöhten Ruß-, beziehungsweise HC-Emissionen vorzubeugen, muss eine ausreichende Sauerstoffkonzentration im Brennraum gewährleistet werden.²

Emissionsgrenzwerte sind nicht speziell für Ruß definiert, sondern umfassen Partikelemissionen als Ganzes. Per Definition sind Stoffe gemeint, welche sich beim Durchströmen von Filterpapier in diesem festsetzen. Partikelemissionen beinhalten neben Ruß auch Öl, Staub, nicht verbrannten Kraftstoff, metallischen Abrieb, polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAHs), Asche, kondensiertes Wasser, das von Feststoffen mitausgetragen wird, und Ähnliches.^{2,3} Partikel $> 10 \mu\text{m}$ werden vom menschlichen Atemsystem abgeschieden und sind daher unproblematisch. Eine Gefahr für die Gesundheit stellen vor allem Partikel mit Größen $< 1 \mu\text{m}$ dar. Diese Partikel können bis in die innersten Atmungsorgane eindringen und sich dort festsetzen.³ Dabei fungieren Partikel aus Dieselabgas beispielsweise als Träger von teilweise krebserregenden Stoffen und sind aus diesem Grund als kritisch zu betrachten.²

In den 90er Jahren wurden erstmals Maßnahmen zur Reduktion von Partikel-Emissionen erprobt. Dazu wurden Einspritzdrücke bei der Verbrennung erhöht, wodurch die Anzahl der damals messbaren, großen Partikel im Abgas gesenkt wurde. Gleichzeitig erhöhte sich dadurch aber der Ausstoß von kleineren Partikeln. In Folge wurde neben

³ (Bin Guan, Review of the state-of-the-art of exhaust particulate filter technology, 2015)

der Partikelmasse auch die Partikelanzahl gesetzlich limitiert. Die Entwicklung der Gesetzgebung in der EU ist in Kapitel 2.4.1 zusammengefasst. Zusätzlich zu innermotorischen Maßnahmen werden seit der EURO IV Norm auch Partikelfilter (DPF) benötigt. In diesen setzen sich, je nach Beladungsgrad, Partikel aus dem Abgas fest. Eine optimale Filtrationseffizienz wird ab DPF-Rußbeladungen von ca. 50 % bezogen auf dessen Maximalbeladung erreicht. In bestimmten Intervallen muss die Rußbeladung des DPF reduziert werden (siehe Kapitel 2.3.2.1), da die Filter nur eine begrenzte Masse an Partikeln aufnehmen können. Bei diesen Regenerationsvorgängen werden feinste Partikel freigesetzt. Für die Emissionen ist somit die Länge des Regenerationsintervalls entscheidend. Einfluss darauf haben vor allem die innermotorischen Partikelemissionen und die angewandte Regenerationsstrategie.²

Innermotorische Maßnahmen zur Reduktion des Partikel-, beziehungsweise Rußausstoßes zeigen ein Trade-off Verhalten bezogen auf NO_x-Emissionen. Geht man beispielsweise von einem Motor aus, welcher hohe NO_x-, aber kaum Ruß-Emissionen aufweist, so führt eine Erhöhung der AGR-Rate zur Reduktion von NO_x- bei gleichzeitigem Anstieg der Ruß-Emissionen. Um den Ruß-Ausstoß wieder zu senken, kann der Einspritzdruck erhöht werden, wodurch eine bessere Zerstäubung des Kraftstoffes erreicht wird. Dies bewirkt wiederum einen Anstieg der lokalen Flammentemperatur, womit NO_x-Levels ansteigen. Ein wiederholtes Durchführen dieser Schritte in Kombination mit einer Erhöhung des Ladedrucks führt schlussendlich zu einem Optimum bezüglich NO_x- und Ruß-Emissionen. Diese Zusammenhänge sind in Abbildung 2-2 für einen 1-Zylinder Testmotor mit 0.5 l Hubraum dargestellt.²

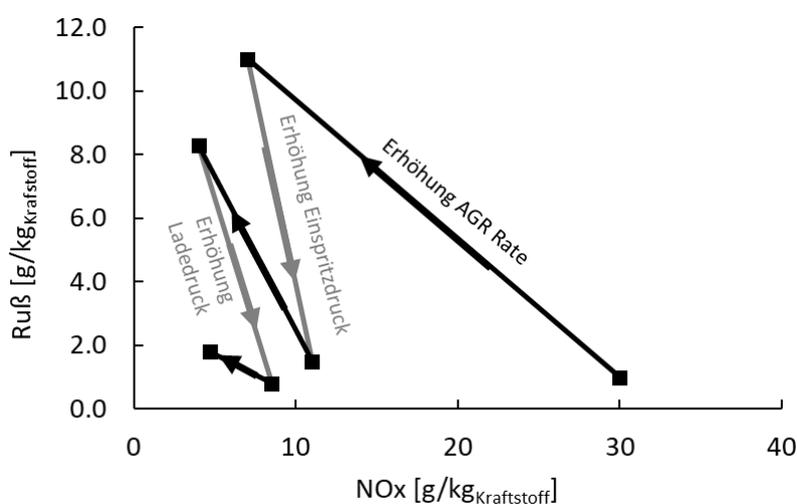


Abbildung 2-2 NO_x/Ruß-Trade-off in Abhängigkeit von AGR-Rate, Einspritzdruck und Ladedruck²

2.2 Katalysatoren

2.2.1 Grundlagen

Chemische Reaktionen geschehen durch das Aufbrechen und die anschließende Neubildung von chemischen Verbindungen. Das Aufbrechen der Verbindungen verbraucht Energie, wohingegen beim Bilden der neuen Bindungen Energie freigesetzt wird. Die Summe dieser Energiemengen bestimmt, ob eine Reaktion exotherm oder endotherm verläuft. Ist die freiwerdende Energie bei der Bildung der neuen Verbindung größer als die für die Dissoziation der Ausgangsprodukte benötigte Energie, so ist die Reaktion insgesamt exotherm. Bei umgekehrten Verhältnissen wird eine Reaktion als endotherm bezeichnet. Unter konstanten Bedingungen sind Reaktionsenthalpie (ΔH) und Gibbs-Energie (ΔG) vom Weg der Reaktion unabhängig. Die Geschwindigkeit einer Reaktion wird stets durch den langsamsten Schritt im Prozess bestimmt und ist unabhängig vom Energieinhalt der Edukte oder Produkte.⁴

Der Verlauf von Reaktionen kann durch die Arrhenius-Gleichung (Gleichung 2-1) beschrieben werden.⁴

$$k = k_0 * \exp\left(-\frac{E_A}{R * T}\right) \quad \text{Gleichung 2-1}$$

Durch den Arrhenius-Ansatz lässt sich die Temperaturabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k darstellen. R in Gleichung 2-1 steht für die allgemeine Gaskonstante, T für die absolute Temperatur, E_A für die Aktivierungsenergie und k_0 für den Stoßfaktor. Aus der Gleichung geht hervor, dass die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante sich indirekt proportional zur Aktivierungsenergie verhält. Dies bedeutet, dass Reaktionen schneller ablaufen, wenn die Aktivierungsenergie reduziert wird. Eine Senkung der Aktivierungsenergie kann durch die Verwendung von Katalysatoren erzielt werden. Katalysatoren beeinflussen die Geschwindigkeit der chemischen Umwandlung unter Einhaltung der Gleichgewichtskonstanten, ermöglichen aber keine thermodynamisch ungünstigen Reaktionen. Im industriellen Anwendungsbereich werden Druck und Temperatur entsprechend gewählt, um günstige Bedingungen für den Ablauf einer Reaktion zu schaffen.⁴

⁴ (Ronald M. Heck, 2009)

2.2.2 Wirkungsweise eines Katalysators am Beispiel der katalytischen Oxidation von CO an einem Pt-Katalysator

Der Effekt eines Katalysators auf eine chemische Reaktion soll anhand der Oxidation von CO zu CO₂ erläutert werden. Diese Reaktion läuft in einem Abgasnachbehandlungssystem im DOC ab. Die Reaktionsrate der nicht-katalysierten Reaktion wird von der Dissoziation der O₂-Moleküle in O-Atome limitiert. Um die nötige Energie zum Aufspalten von Sauerstoffmolekülen bereitzustellen, sind Temperaturen > 700 °C nötig. Die anschließende Oxidation von CO zu CO₂ verläuft rapide und exotherm, sobald die erforderlichen Temperaturen erreicht werden. Die Temperatur, bei der eine Reaktion zu wirken beginnt, wird als Light-Off-Temperatur bezeichnet. Der Energieaufwand für die Dissoziation von O₂ und die Umwandlung von CO zu CO₂ wird in weiterer Folge mit E_{NC} bezeichnet. Unter Verwendung eines festen Katalysators kann die zum Start der Reaktion benötigte Temperatur auf 100 °C gesenkt werden. Dieser Vorgang wird als heterogene Katalyse bezeichnet, da Reaktanden und Katalysator in zwei verschiedenen Phasen vorliegen. Ein Vergleich der nötigen Mindesttemperaturen für die katalysierte und nicht-katalysierte Reaktion ist in Abbildung 2-4 dargestellt. Für die CO-Oxidation können zum Beispiel Katalysatoren mit einer Pt-Beschichtung verwendet werden. CO und O₂ werden durch Chemisorption teilweise an unterschiedlichen Stellen an die Katalysatoroberfläche gebunden. In Anwesenheit von Platin verläuft die Dissoziation von O₂ rasant und tritt bereits bei Raumtemperatur auf. An der Katalysatoroberfläche bilden hochreaktive O-Atome und CO-Moleküle CO₂, welches folglich von der Oberfläche desorbiert. Dadurch werden die Stellen, an denen die Moleküle gebunden waren, wieder frei. Die Aktivierungsenergie, welche für die katalysierte Reaktion benötigt wird, wird im Weiteren als E_C bezeichnet. Durch Einsatz des Pt-Katalysators kann die Aktivierungsenergie der Reaktion maßgeblich gesenkt werden (E_C < E_{NC}). Ein Vergleich zwischen katalysierter und nicht-katalysierter Reaktion ist in Abbildung 2-3 dargestellt. ΔH_R, welches im Fall der katalysierten Reaktion die Adsorptionswärme (ΔH_a), die Reaktionswärme und Desorptionswärme (ΔH_d) beinhaltet, ist konstant.⁴

In Abbildung 2-4 ist ersichtlich, dass die nicht-katalysierte Reaktion eine höhere Temperatursensitivität aufweist als die katalysierte. Erkennbar ist das an der Steigung der Kurven. Bereits ein geringer Temperaturunterschied führt bei der nicht-katalysierten Reaktion zu einer deutlichen Veränderung des CO-Umsatzes.⁴

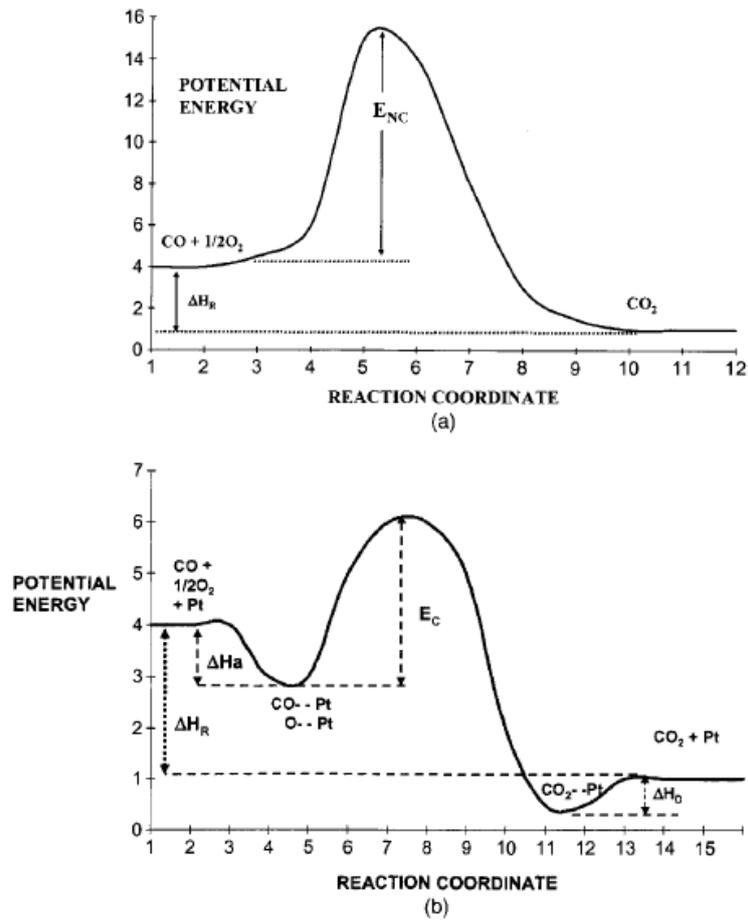


Abbildung 2-3 Aktivierungsenergie der Oxidation von CO zu CO_2 ; Vergleich zwischen (a) nicht-katalysierter (E_{NC}) und (b) katalysierter (E_{C}) Reaktion⁴

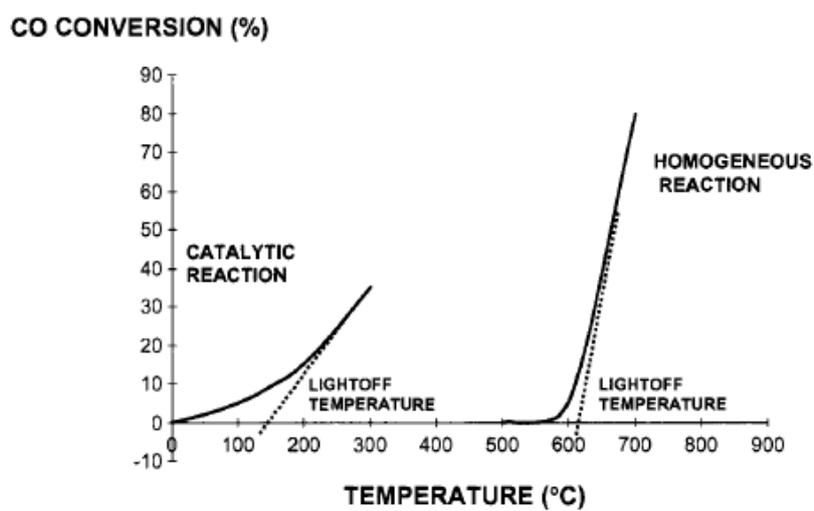


Abbildung 2-4 CO-Umsatz in Abhängigkeit der Reaktionstemperatur; Vergleich katalysierte und nicht-katalysierte Reaktion⁴

2.2.3 Katalytische Materialien und Trägerstoffe

Häufig zur Katalyse eingesetzte Edelmetalle (oft auch als PGM (Platin Group Metals) bezeichnet) befinden sich in Gruppe VIIIB im Periodensystem und umfassen die Elemente Ruthenium (Ru), Rhodium (Rh), Palladium (Pd), Iridium (Ir), Platin (Pt) und Osmium (Os). In katalytischen Abgasnachbehandlungssystemen werden vorwiegend die Stoffe Pt, Pd und Rh oder deren Kombinationen eingesetzt. Edelmetalle weisen eine hohe chemische und thermische Beständigkeit auf, sind aber dennoch einige der katalytisch aktivsten, natürlichen Elemente. Die hohe katalytische Effektivität verdanken sie ihrer Fähigkeit zur rapiden Chemisorption und Umwandlung von adsorbierten Stoffen. Edelmetalle kommen weltweit nur selten vor und werden daher nach Ablauf ihrer Verwendung recycelt, aufgereinigt und wiederverwendet. Die größten Abbaustätten befinden sich in Südafrika und Russland, während auch in Kanada und in den USA geringe Vorkommen existieren.⁴

Weitere Elemente aus der Gruppe VIIIB, welche ebenfalls als Katalysatoren zum Einsatz kommen, sind Eisen (Fe), Kobalt (Co) und Nickel (Ni). Zusätzlich finden auch Kupfer (Cu), Silber (Ag), Vanadium (V), Chrom (Cr) und Molybdän (Mo) industriell als Katalysatoren Verwendung. Im Vergleich zu Pt, Pd und Rh weisen die meisten dieser Elemente niedrige katalytische Aktivitäten auf. Sie sind durch die höhere Verfügbarkeit deutlich billiger und besitzen für ausgewählte Zwecke eine höhere Selektivität. Vor allem in der Automobilindustrie wird versucht, PGM-Katalysatoren durch unedle Metalle zu ersetzen. Aufgrund ihrer niedrigen Aktivität, ihrer Anfälligkeit für Vergiftung und der geringen hydrothermischen Beständigkeit sind diese für den Einsatz im Abgasnachbehandlungsstrang ungeeignet.⁴

Bei der aktiven katalytischen Komponente muss es sich nicht zwangsläufig um das reine Metall handeln, oft sind es auch dessen Metalloxide. Zur Oxidation von Kohlenwasserstoffen ist PdO beispielsweise besser geeignet als reines Pd.⁴ Eine Unterteilung von Katalysatoren erfolgt häufig auch nach deren Verwendungszweck. Einige Beispiele sind:

- Alkylierungskatalysatoren zur Verlängerung von organischen Ketten (z.B. AlCl_3)
- Isomerisationskatalysatoren zur Erhöhung der Oktanzahl von Ottomotor-Treibstoffen (z.B. Al_2O_3)

- Hydrogenierung-/Dehydrogenierungskatalysatoren, welche gute Eigenschaften zur Ausbildung von Wasserstoff-Bindungen aufweisen. Am besten sind dazu Elemente mit einem leeren d-Orbital wie beispielsweise Co, Ni, Rh, Ru, Pd und Pt geeignet.
- Oxidationskatalysatoren, welche in einem breiten Bereich für Oxidationsreaktionen Anwendung finden. Hauptsächlich findet man diese in Gruppe VIII des Periodensystems (z.B. Ag, Cu, Pt, Fe oder Ni und deren Oxide).
- Hydrierung-/Dehydrierungskatalysatoren zeichnen sich durch eine hohe Affinität für Wasser aus (z.B. Al₂O₃, Tonminerale oder Phosphate).
- Halogenierung-/Dehalogenierungskatalysatoren wie beispielsweise CuCl₂ oder AgCl unter Zusatz von Pd zur Steigerung der Selektivität.⁵

Bei Verwendung von heterogenen Katalysatoren laufen die chemischen Reaktionen für gewöhnlich auf der Katalysatoroberfläche oder in ihrer unmittelbaren Umgebung ab. Die Effizienz von heterogenen Katalysatoren ist von der Größe ihrer Oberfläche abhängig. Um möglichst große spezifische Oberflächen bereitzustellen, können verschiedenste Prinzipien angewandt werden.⁵

Ein Beispiel sind Schüttgutkatalysatoren. Diese weisen eine hohe Porosität auf, wodurch spezifische Oberflächen von mehreren 100 m² pro Gramm erreicht werden können. Ein Beispiel für Schüttgutkatalysatoren ist Raney-Nickel, welches zur Hydrogenierung von Fetten eingesetzt wird.⁵

Katalysatoren, bei denen sich die aktiven Stellen ausschließlich auf der geometrischen Oberfläche befinden, werden als Monolithe bezeichnet. Bei dieser Ausführung wird eine große Oberfläche durch die Anordnung vieler, schmaler Kanäle in einem metallischen oder keramischen Träger erzielt. Auf die Wände dieser Kanäle wird eine dünne, aktive Beschichtung (auch „Washcoat“ genannt) aufgetragen. Beispiele für diese Variante sind Honigwaben-Katalysatoren mit Kanaldichten > 200 CPSI. Diese Katalysatoren werden beispielsweise in der Fahrzeugtechnik und Industrie zur SCR-basierten Entfernung von NO_x aus Abgasen verwendet.⁵

Eine einfache Möglichkeit zur Effizienzsteigerung von Katalysatoren bietet das Einbetten von katalytisch aktiven Stellen in einen Käfig mit genau definierten Öffnungsquerschnitten. Nur Moleküle, welche kleiner sind als die Öffnungen, können die aktiven

⁵ (Siebenhofer, 2017)

Stellen erreichen. Im Gegenzug können nach Ablauf der Reaktion auch nur Produkte, welche klein genug sind, die aktiven Stellen wieder verlassen. Hauptvertreter dieser Gruppe von Katalysatoren sind Zeolithe. Bei Zeolithen handelt es sich um Alumosilikate, welche durch Quellprozesse in Tauchrohröfen hergestellt werden. Die spezifischen Adsorptionseigenschaften von Zeolithen beruhen auf ihrer tetraedrischen Kristallstruktur mit Si als Zentralatom. Die Porenstruktur von Zeolithen weist Größen im Bereich von 3-8 nm auf. Sie werden daher auch als Molekularsiebe bezeichnet.⁴ Bei der industriellen Herstellung können durch Größenvariation der Komplementär-Kationen Zeolithe mit unterschiedlichen Adsorptionseigenschaften erzeugt werden.⁵

2.2.4 Verteilung einer katalytischen Komponente auf ihrem Trägerstoff

In vielen industriellen Anwendungen wird die Effizienz von Katalysatoren von der Anzahl der freien aktiven Stellen auf der Katalysatoroberfläche bestimmt. Daher wird eine möglichst feine und gleichmäßige Verteilung der katalytischen Komponente auf der Oberfläche angestrebt. Wie bereits in Kapitel 2.2.3 erwähnt, gibt es mehrere Möglichkeiten zur Oberflächenmaximierung der Trägerstoffe von heterogenen Katalysatoren. Die Trägerstoffe weisen selbst meist keine katalytische Aktivität auf, haben aber eine beschleunigende Wirkung auf die Katalyse und bestimmen die Gesamtstabilität des Katalysators. In der Umwelttechnik kommen zur Emissionsregulierung häufig Träger aus Al_2O_3 zum Einsatz.⁴

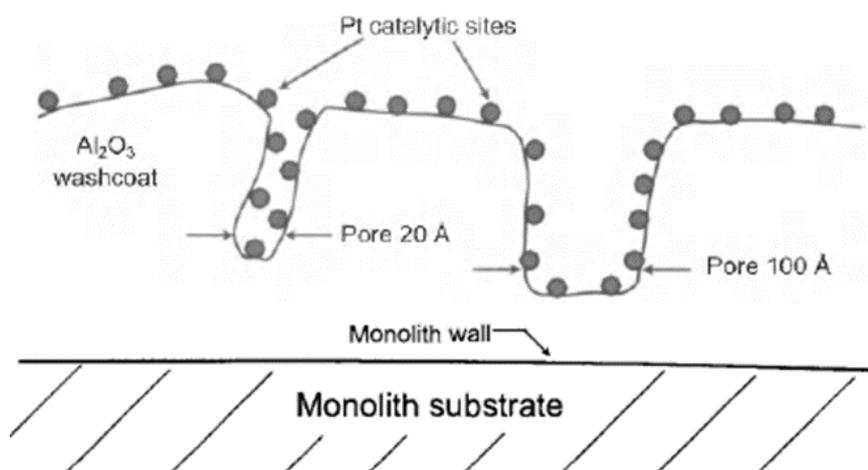


Abbildung 2-5 Idealisiertes Modell zur Darstellung katalytisch aktiver Stellen auf einem Al_2O_3 Washcoat gebunden an einen Monolith⁴

In Abbildung 2-5 ist die idealisierte Verteilung von Pt auf einem Al_2O_3 -Träger dargestellt. Die Poren in der Zeichnung haben Durchmesser von 2-10 nm. Auf der Oberfläche des Al_2O_3 -Trägers befinden sich unzählige OH^- Gruppen (in der Abbildung nicht dargestellt). Die Anzahl dieser Gruppen hängt von der Art des Al_2O_3 und seiner thermischen Behandlung ab. An die OH^- Gruppen können katalytisch aktive Stoffe gebunden werden. Die aktive Oberfläche setzt sich aus allen Stellen, an welche die katalytische Komponente gebunden ist, zusammen. Je kleiner die Kristallite des katalytisch aktiven Stoffes sind, desto mehr aktive Stellen bilden sich auf der Katalysatoroberfläche. Nicht alle Reaktionen profitieren von einer Vergrößerung der katalytischen Oberfläche. In manchen Fällen sind Reaktionen auch sensibel gegenüber der strukturellen Anordnung der aktiven Stellen.⁴

In der idealisierten Darstellung in Abbildung 2-5 ist jede Pt-Stelle für die Reaktanden erreichbar und das Platin ist gleichmäßig über den Trägerstoff verteilt, wodurch die aktive Katalysatoroberfläche maximiert wird. Die Maximierung der Katalysatoroberfläche kann dazu führen, dass andere physikalische Schritte, die den Ablauf der Reaktion bestimmen, geschwindigkeitslimitierend werden (Kapitel 2.2.5: Heterogene Katalyse). Der dadurch entstehende Gesamtprozess der heterogenen Katalyse wird im folgenden Kapitel erläutert.⁴

2.2.5 Chemische und physikalische Schritte der heterogenen Katalyse

Um einen möglichst effizienten Ablauf einer Reaktion gewährleisten zu können, muss sichergestellt werden, dass die katalytische Komponente im Porennetzwerk des Trägerstoffes für die Reaktanden gut zugänglich ist. Die einzelnen Prozessschritte einer heterogen katalysierten Reaktion werden im Folgenden wieder anhand der Oxidation von CO zu CO_2 erläutert.⁴

- 1) Konvektiver Stofftransport hin zur Katalysatoroberfläche: Die Reaktanden (CO und O_2) müssen in Kontakt mit den katalytischen Komponenten an der Substratoberfläche gebracht werden. Dabei diffundieren die Moleküle durch eine dünne Grenzschicht über der Katalysatoroberfläche. Die Diffusionsgeschwindigkeit verändert sich mit ca. $T^{3/2}$. Eine „scheinbare“ Aktivierungsenergie von $E_1 = 8-17 \text{ kJ/mol}$ wird für die Diffusion benötigt. Der Begriff „scheinbare“ Akti-

vierungsenergie wird verwendet, da es sich bei Diffusion um einen physikalischen Effekt und nicht um eine chemische Reaktion im eigentlichen Sinne handelt.

- 2) Diffusion der Reaktanden in die Poren des Trägerstoffes: Da der Großteil der katalytischen Komponente sich in den Poren des Trägers befindet, müssen die Reaktanden zunächst in diese vordringen. Die „scheinbare“ Aktivierungsenergie zur Porendiffusion (E_2) ist etwa halb so groß wie jene der chemischen Reaktion und liegt bei der Oxidation von CO im Bereich von 25-42 kJ/mol.
- 3) Adsorption der Reaktanden an aktive Stellen auf der Katalysatoroberfläche: Wenn CO und O₂ die Katalysatoroberfläche erreichen, dissoziiert O₂ rasch in zwei O-Atome und CO sowie O werden durch Chemisorption an benachbarten, aktiven Stellen an die Oberfläche gebunden. Die Rate, mit welcher dieser Schritt abläuft, zeigt im Allgemeinen folgende Temperaturabhängigkeit: $\exp(-\frac{E_3}{R*T})$. E_3 bezeichnet darin die Aktivierungsenergie für die Chemisorption, welche für gewöhnlich größer als 42 kJ/mol ist.
- 4) Chemische Reaktion: Zwischen den adsorbierten O- und CO-Molekülen bilden sich aktivierte Komplexe aus. Die Energie dieser Komplexe entspricht dem Maximalwert der Aktivierungsenergie im Reaktionsverlauf. Aus den aktiven Komplexen bildet sich daraufhin CO₂, welches vorerst an der Oberfläche adsorbiert bleibt. Die Reaktionsrate folgt, gleich wie in Schritt 3, wieder einer Temperaturabhängigkeit von: $\exp(-\frac{E_4}{R*T})$. E_4 ist auch in diesem Schritt normalerweise größer als 42 kJ/mol.
- 5) Desorption des Produktes: CO₂ desorbiert von den aktiven Stellen. Dieser Vorgang verläuft wieder in exponentieller Abhängigkeit von Aktivierungsenergie und Temperatur $\exp(-\frac{E_5}{R*T})$. E_5 liegt gleich wie E_3 im Bereich von > 42 kJ/mol.
- 6) Diffusion aus der Porenstruktur des Substrates: Das desorbierte CO₂ muss aus den Poren wieder an die Katalysatoroberfläche diffundieren. Dies folgt derselben Kinetik wie in Schritt 2 beschrieben.
- 7) Konvektiver Stofftransport zurück in die Bulk-Phase: Das entstandene CO₂ muss zuletzt wieder durch die Grenzschicht über der Katalysatoroberfläche in die Bulk-Gasphase diffundieren. Diese Diffusion verläuft gleich wie Schritt 1 mit

einer Temperaturabhängigkeit von $T^{3/2}$ und einer „scheinbaren“ Aktivierungsenergie von 8-17 kJ/mol.

Schritte 1 und 7 spiegeln den Stofftransport wieder. Dieser ist abhängig von den an der Reaktion beteiligten Molekülen, den Strömungsbedingungen im Gas und der Beschaffenheit der Katalysatoroberfläche. Der Ablauf der Porendiffusion in Schritt 2 und 6 wird durch Form und Größe der Poren, Reaktanden und Produkte der Reaktion bestimmt. Schritte 3 bis 5 stellen chemische Abläufe dar und sind daher von der Interaktion zwischen Reaktanden und den katalytisch aktiven Elementen abhängig. Bei jedem dieser Schritte kann es sich potentiell um den geschwindigkeitslimitierenden Schritt für die Gesamtreaktion handeln.^{4,5}

Chemische Abläufe bestimmen zunächst die Reaktionsrate. Bei Erhöhung der Temperatur steigt die Umsatzrate der chemischen Reaktionen relativ zum Stofftransport um das Vielfache an. Dies geschieht, da die Umsatzrate vieler chemischer Reaktionen eine starke Temperatursensitivität aufweist (nach der Arrhenius Gleichung). Wird eine bestimmte Temperatur überschritten, so wird die Porendiffusion zum geschwindigkeitslimitierenden Prozessschritt, bis der Ablauf schlussendlich durch den Stofftransport in die und aus der Bulk-Phase beschränkt wird. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 2-6 dargestellt. Darin ist erkennbar, dass der Stofftransport zur und von der Katalysatoroberfläche bei geringen Temperaturen viel schneller verläuft als die Porendiffusion und die chemische Reaktion. Mit steigender Temperatur bleibt die Stofftransportrate annähernd konstant. Die Raten der Porendiffusion und der chemischen Reaktion nehmen stark zu. Es gilt also, dass zwischen Temperatur A und B die chemische Reaktion limitierend ist, zwischen B und C die Porendiffusion und bei Temperaturen über C der Stofftransport in die und aus der Bulk-Phase den Reaktionsablauf beschränkt.⁴

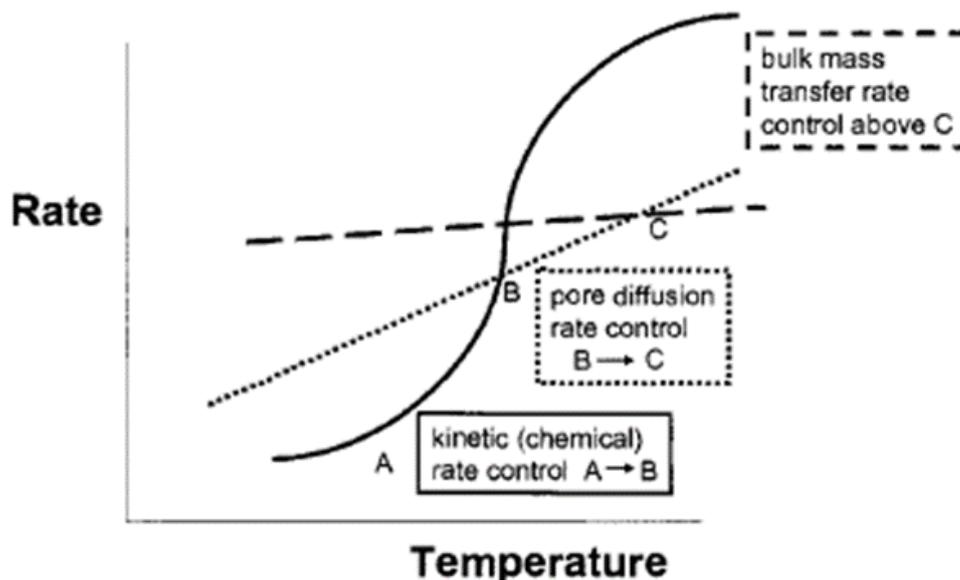
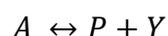


Abbildung 2-6 Verlauf der Geschwindigkeit von Stofftransport (bulk mass transfer), Porendiffusion und der Reaktionskinetik in Abhängigkeit von der Temperatur⁴

2.2.6 Selektivität, Umsatz und Ausbeute

Wichtige Größen zur Beurteilung der Effizienz eines Katalysators für eine bestimmte Anwendung sind Selektivität, Umsatz und Ausbeute. Durch die Veränderung der Aktivierungsenergie einer Reaktion kann ein bestimmter Schritt der Reaktion beschleunigt werden. Die Selektivität ist vor allem bei Reaktionen, bei denen mehrere Produkte gleichzeitig entstehen, relevant. Die Fähigkeit von Katalysatoren, Reaktionsraten zu verbessern und die Bildung von spezifischen Produkten gezielt zu fördern, macht sie zu einem essentiellen Bestandteil in der Umwelttechnik, Erdöl- und chemischen Industrie. Für eine beliebige Reaktion mit mehreren Produkten, wie nachfolgend dargestellt, gilt:



Die Selektivität S , wie in Gleichung 2-2 beschrieben, gibt die Konzentration des gewünschten Produktes R , in Relation zu den Konzentrationen der anderen Nebenprodukte der Reaktion an. Der Index „out“ bezeichnet die Auslassposition des Katalysators/Reaktors.^{4,5}

$$S = \frac{c_{Rout}}{(c_R + c_X + c_P + c_Y)_{out}} \quad \text{Gleichung 2-2}$$

Der relative Umsatz X , wie in Gleichung 2-3 dargestellt, beschreibt wieviel des Einsatzstoffes A während einer Reaktion verbraucht wurde. Der Index „0“ bezeichnet die Einlassposition des Katalysators/Reaktors.⁶

$$X = \frac{c_{A,0} - c_{Aout}}{c_{A,0}} \quad \text{Gleichung 2-3}$$

Die Ausbeute Y an Produkt R ist in Gleichung 2-4 definiert. Sie gibt das Verhältnis zwischen entstandenem Produkt R und eingesetzter Menge des Einsatzstoffes A an.⁵

$$Y = \frac{c_{Rout}}{c_{A,0}} \quad \text{Gleichung 2-4}$$

⁶ (Susanne Lux, 2015)

2.3 Das Abgasnachbehandlungssystem

Im Nutzfahrzeugsektor muss im Gegensatz zum PKW ein NO_x -Reduktionsverfahren gewählt werden, welches auch bei hohen Sauerstoffkonzentrationen im Abgas, die bei Dieselmotoren auftreten, funktioniert. Diese Systeme basieren auf der katalytischen Reduktion von Stickstoffoxiden mittels Ammoniak (NH_3). Dazu wird vor dem SCR-Katalysator eine 32,5-prozentige, wässrige Harnstofflösung ($\text{NH}_2\text{-CO-NH}_2$) eingebracht (in Amerika als DEF, in der EU als AdBlue® bezeichnet), welche im heißen Abgas zu Ammoniak zerfällt. Ein typisches Nutzfahrzeug-Abgasnachbehandlungssystem basierend auf SCR für EURO VI setzt sich, wie in Abbildung 2-7 dargestellt, aus DOC, DPF, Harnstoffdosiereinheit, SCR und ASC zusammen.⁷

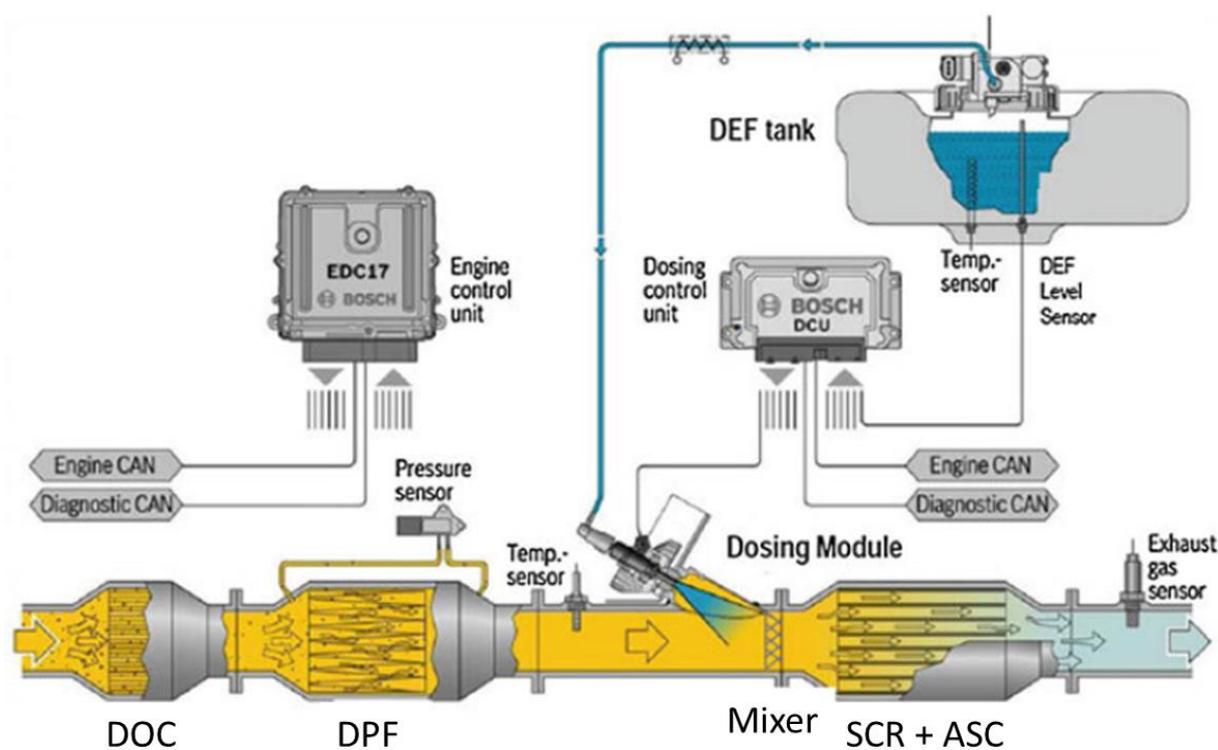
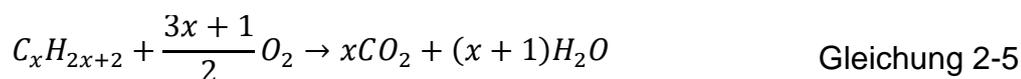


Abbildung 2-7 Aufbau eines SCR-Abgasnachbehandlungssystems für Dieselmotoren mit DOC, DPF und SCR + ASC⁷

⁷ (Isabella Nova, 2014)

2.3.1 DOC

Der DOC (Diesel Oxidation Catalyst) hat mehrere Funktionen im Abgasnachbehandlungsstrang. Er oxidiert Kohlenwasserstoffe und CO, um einerseits Emissionen zu reduzieren und andererseits thermische Energie zur DPF-Regeneration bereitzustellen.⁴ Zusätzlich wird im DOC auch NO zu NO₂ oxidiert. Die allgemeine Oxidation von Kohlenwasserstoffen ist in Gleichung 2-5 und die Oxidation von NO in Gleichung 2-6 dargestellt.³ Der Einfluss der NO₂-Konzentration im Abgas auf die passive Regeneration des DPF und die SCR-Reaktion wird in den nachfolgenden Kapiteln genauer erläutert.⁷



In der Literatur wurde der Zusammenhang zwischen HC/CO-Oxidation und NO₂-Bildung am DOC untersucht. Diese haben gezeigt, dass die NO₂-Bildung auf Pt/Pd durch die Reduktion von NO₂ durch HCs gehemmt wird. Langkettige Kohlenwasserstoffe haben einen gravierenderen Einfluss auf die NO₂-Bildung als kurzkettige, da diese nur langsam von Sauerstoff oxidiert werden. Bei niedrigen Raumgeschwindigkeiten (Space Velocity, oder kurz als SV bezeichnet) verläuft die NO₂-Bildung auch in Anwesenheit von Kohlenwasserstoffen ausreichend gut. Auch bei beschichteten DPFs hat sich gezeigt, dass HCs, welche den DOC verlassen, einen großen Einfluss auf die NO₂-Bildung im DPF haben. Der Einfluss des NO₂, welches aus dem DOC ausströmt, ist im Vergleich dazu vernachlässigbar klein. Ein weiterer wichtiger Faktor für die NO₂-Bildung ist der Platingehalt der aktiven Beschichtung von DOC oder DPF.⁷

Wenn ein Pt-beschichteter DOC oder DPF für längere Zeit Temperaturen über 670 °C ausgesetzt ist, kann Platin aus diesem entweichen und sich in nachfolgenden Komponenten des Abgasnachbehandlungssystems ablagern. Dadurch fällt die SCR-Effizienz, da bereits kleinste Mengen an Pt das Reduktionsmittel NH₃ oxidieren. Temperaturen in dieser Größenordnung können während DPF-Regenerationen erreicht werden. Eine Möglichkeit zur Erhöhung der thermischen Stabilität von Beschichtungen stellt die Substitution von Teilen des Pt durch Pd dar. Bei einem Pt:Pd-Verhältnis von 2:1 tritt zwar auch eine Verschlechterung der SCR-Performance auf, allerdings ist diese deutlich geringer als bei reinen Pt-Beschichtungen. Das Verhalten der Oxidation von CO, NO und HCs bleibt durch die Addition von Pd unbeeinflusst und wird teilweise

sogar verbessert. Wenn HCs und CO gleichzeitig am DOC umgesetzt werden, können niedrigere Light-Off-Temperaturen erreicht werden als bei der reinen HC-Oxidation.⁷

Bimetallische Beschichtungen aus Pt und Pd zeigen ein besseres Light-Off-Verhalten der HC-Oxidation und haben eine höhere thermische Stabilität als Beschichtungen aus den reinen Metallen. Ein bimetallisch (4:1 Verhältnis Pt:Pd) mit 40 g/ft³ beladener DOC zeigt eine vergleichbare Light-Off-Temperatur beim Umsatz von HC und CO wie ein mit 113 g/ft³, rein platinbeschichteter DOC. Der Effekt von Palladium auf die Eigenschaften eines DOC ist in Abbildung 2-8 dargestellt. Es zeigt sich, dass ein geringer Pd-Anteil die NO₂-Oxidation kaum beeinflusst. Die thermische Stabilität sowie Kosten des DOC steigen mit höher werdendem Pd-Anteil an.⁷

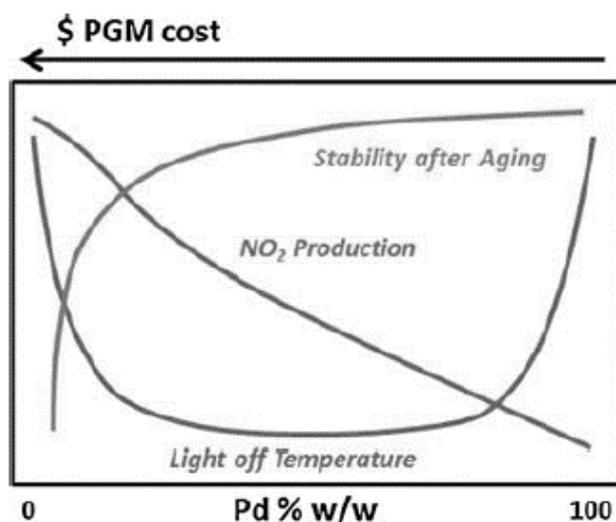


Abbildung 2-8 Effekt von unterschiedlichen Pd-Massenanteilen im Verhältnis zu Pt auf die Performance eines DOC⁷

Das Treibhausgas N₂O kann unter entsprechenden Umständen im DOC aus NO gebildet werden. Speziell bei hohen Abgastemperaturen kann Pd die Bildung von N₂O verhindern. Es ist auch bekannt, dass verschiedene HC-Ketten unterschiedliche Mengen an N₂O bilden. Unter Anwesenheit von Propen (C₃H₆) wird beispielsweise deutlich mehr N₂O gebildet als durch Dodekan (C₁₂H₂₆).⁸ Wenn CO im Abgas vorhanden ist, dann beginnt die N₂O Bildung aus Propen erst ab 250 °C verglichen zu 200 °C bei CO-freiem Abgas.⁷

⁸ (Kamasamudram, 2012)

2.3.1.1 DOC-Alterung und Deaktivierung

In einem gewöhnlichen EURO VI System ist der DOC die erste Komponente des Abgasnachbehandlungsstrangs. Er befindet sich nach dem Turbolader und erfährt normalerweise Maximaltemperaturen $< 650\text{ °C}$. Da Technologien und Materialien für DOCs aus TWCs von Benzinmotoren übernommen wurden, welche weitaus höheren Abgastemperaturen ausgesetzt sind, stellt die thermische Belastung kein großes Problem für DOCs dar. Bei der Verbrennung von Diesel werden relativ hohe Mengen an unverbranntem Öl und Additiven ausgestoßen. Diese lagern sich in kalten Betriebsphasen im DOC ab. Im Gegensatz zu organischen Bestandteilen von Öl verbrennen diese Additive bei Erreichen von entsprechenden Temperaturen nicht. Es verbleiben dadurch Zink, Phosphor, Schwefel und Kalzium längerfristig im Katalysator. Schwefel lagert sich in allen Schichten des Washcoat ab, während P-, Zn- und Ca-Verbindungen hauptsächlich an der Oberfläche konzentriert sind. Die Ablagerung dieser Verbindungen stellt das größte Problem hinsichtlich der DOC-Deaktivierung dar. Wenn bekannt ist, welche Spezies sich wo am DOC ablagert, können die Beschichtungen so ausgelegt werden, dass katalytische Stellen geschützt in Poren des Washcoat platziert sind. Darüber hinaus muss die Porenstruktur so beschaffen sein, dass größere Mengen dieser Metalloxide aufgenommen werden können, ohne dass eine Limitierung der Reaktionsrate bedingt durch erschwerte Porendiffusion auftritt. Bei mittelschweren bis schweren Nutzfahrzeugen ist es nach 300000 gefahrenen Kilometern nicht untypisch, dass diese Metalle 2-3 % des DOC-Gewichts ausmachen. Dennoch weisen DOCs in diesem Zustand wenig bis keine Leistungseinbußen auf.⁴

Im Dauerbetrieb bei 200-300 °C hat sich gezeigt, dass die Fähigkeit des DOC, NO zu NO₂ zu oxidieren, sich in Anwesenheit von Schwefel erheblich verschlechtert. In den Tests wurde Diesel mit einem Schwefelgehalt $< 15\text{ ppm}$ verwendet. Innerhalb von 600 Betriebsstunden fiel das, vom DOC gelieferte, NO₂/NO_x-Verhältnis von ursprünglich 60 % auf 30 %. Das NO₂/NO_x-Verhältnis blieb nach Ablauf der ersten 600 h für die Restdauer des Experiments konstant bei 30 %.⁷

2.3.2 DPF

Bei Diesel-Partikelfiltern (DPF) handelt es sich um keramische Honigwaben-Substrate, welche Partikel aus dem Abgasstrom filtern. Üblicherweise sind die Kanäle des DPF abwechselnd am Eintritt oder am Austritt verschlossen. Der Gasstrom wird dadurch

durch die porösen Kanalwände geleitet, wobei sich (Ruß-)Partikel mit größerem Durchmesser als der Porendurchmesser an den Wänden absetzen.³ DPFs, welche nach diesem Prinzip funktionieren, erreichen Filtrationseffizienzen für PM > 95 % und werden auch als wall-flow-DPF bezeichnet. Der Aufbau eines wall-flow-DPF ist in Abbildung 2-9 schematisch dargestellt.⁴

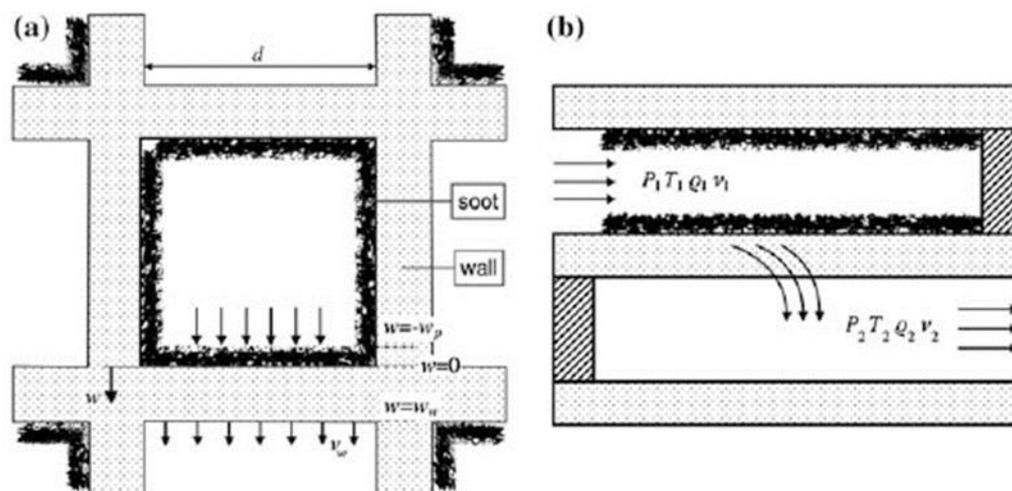


Abbildung 2-9 Aufbau von DPF Substraten (wall-flow). a) Vorderansicht, b) Seitenansicht⁷

Neben wall-flow-Partikelfiltern existieren auch andere, weniger weit verbreitete Technologien. Beispiele dafür sind Sintermetallfilter oder Kerzenfilter. Ebenso existieren flow-through Metall-Monolithe (das Gas strömt durch die Monolith-Kanäle), in welchen Partikel durch Maschensiebe zurückgehalten werden.⁴

Die Hauptanforderungen an ein DPF-Substrat werden durch Filtrationseffizienz, Druckverlust und thermische sowie strukturelle Robustheit definiert. Materialien und Porendesign werden dahingehend optimiert, möglichst geringe Druckverluste bei gleichzeitig hoher thermischer Stabilität und möglichst langen Regenerationsintervallen zu liefern.³ Auf die DPF-Regeneration wird im folgenden Kapitel eingegangen. Kommerziell eingesetzte DPFs bestehen meist aus Cordierit, Siliciumcarbid (SiC) oder Aluminiumtitanat (AT). Siliciumcarbid und Aluminiumtitanat weisen eine höhere Temperaturbeständigkeit auf als Cordierit, sind aber deutlich teurer. Daher werden diese Technologien nur eingesetzt, wenn beim Rußabbrand hohe Temperaturen (bis zu 1300 °C) auftreten können.⁴ Abbildung 2-10 zeigt eine Gegenüberstellung typischer Anwendungsbereiche von Cordierit und SiC-DPFs. Aus der Grafik geht hervor, dass Cordierit-DPFs vor allem im mittelschweren bis schweren Nutzfahrzeugsektor Anwendung finden und SiC bei leichten Nutzfahrzeugen bevorzugt verwendet wird.³

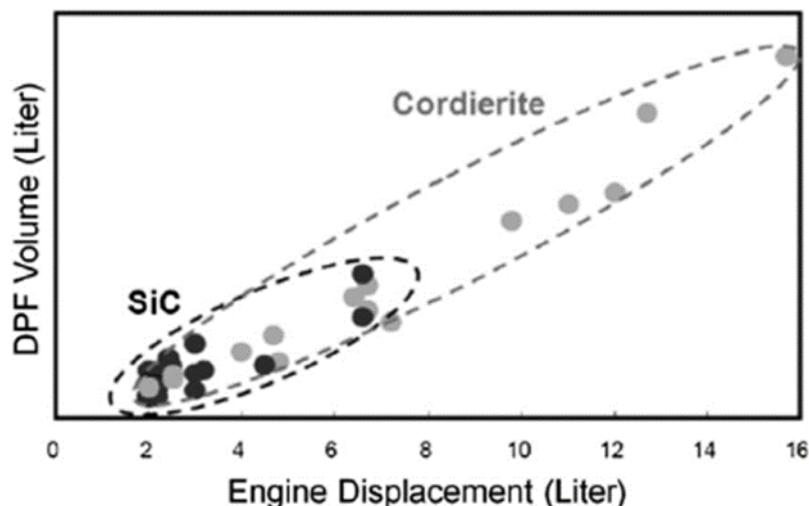
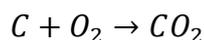


Abbildung 2-10 Anwendungsbereich von SiC und Cordierit Partikelfiltern³

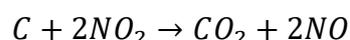
2.3.2.1 DPF Regeneration

Im Laufe des Betriebes steigt durch das Anwachsen des Rußfilterkuchens im DPF dessen Gegendruck kontinuierlich an. Der Anstieg des Gegendrucks führt zu einer Verbrauchserhöhung des Motors. Wenn der Gegendruck zu groß wird, muss der DPF regeneriert werden. Bei solchen Events spricht man von aktiver DPF-Regeneration. Dazu sind Temperaturen von mindestens 500 °C nötig. Temperaturen dieser Größenordnung werden von Dieselmotoren während des Normalbetriebes nur selten erreicht.⁴ Bei Regenerationsevents können im DPF durch eine inhomogene Rußverteilung lokal sehr hohe Temperaturen und Temperaturgradienten auftreten. Daher ist eine applikationsoptimierte Regelung der Filter-Regeneration von großer Bedeutung.³

Neben der aktiven Regeneration bei Erreichen des Gegendrucklimits werden Partikelfilter während des Betriebes auch passiv regeneriert. Die Oxidation von (Ruß-)Partikeln mit Sauerstoff erfordert Temperaturen von rund 500-600 °C (Gleichung 2-7). NO₂ stellt ein stärkeres Oxidationsmittel dar als O₂. Bei Verfügbarkeit von NO₂ beginnt die Reaktion aus Gleichung 2-8 bereits bei 260 °C. Die Oxidation von Ruß mit NO₂ stellt aufgrund dieser Charakteristik die dominante Reaktion, sowohl für die passive als auch für die aktive Filterregeneration, dar.³



Gleichung 2-7



Gleichung 2-8

Um die Zündtemperatur für den Rußabbrand zu verringern, kann ein DPF mit einem katalytisch aktiven Washcoat beschichtet werden. Dafür verwendete Beschichtungen entsprechen jenen, die auch bei DOCs eingesetzt werden.⁴ Diese Beschichtungen weisen typischerweise nur geringe PGM-Beladungen auf und können die nötige Temperatur zur Oxidation der kumulierten Partikel auf 300-400 °C senken. Dadurch wird das Potential, den Filter während des Normalbetriebes passiv zu regenerieren, verbessert.³

Um die Regenerationsintervalle von DPFs zu verlängern, kann auch der Aufbau des Substrates dahingehend optimiert werden, mehr Partikel einlagern zu können, ohne große Gegendruckerhöhungen zu erfahren. Eine Möglichkeit dazu stellt die Verwendung einer asymmetrischen Zellstruktur (Asymmetric Cell Technology; kurz ACT) dar. Dabei sind die Einlasskanäle des DPF größer als die Auslasskanäle. In Abbildung 2-11 (a) ist ein schematischer Vergleich zwischen symmetrischem und asymmetrischem Zelldesign dargestellt. Ebenso werden Messdaten von asymmetrisch und symmetrisch aufgebauten DPFs verglichen. Aus Abbildung (b) geht hervor, dass bei DPF-Rußbeladungen ≥ 5 g/l und gleichzeitig hoher Aschebeladung, ein DPF mit asymmetrischen Zellen deutlich weniger Gegendruck aufbaut als ein Filter mit symmetrischen Zellen.³

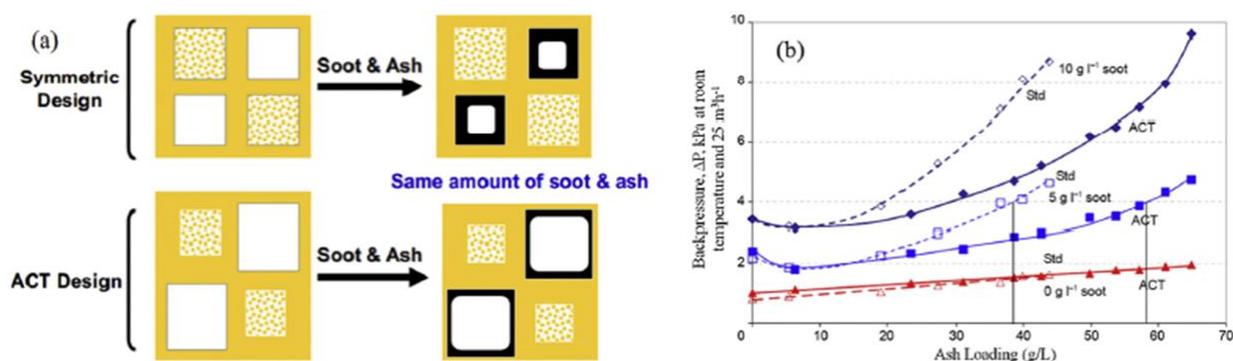


Abbildung 2-11 Asymmetrische Zellstruktur (ACT) bei Partikelfiltern. a) Vergleich zwischen DPF mit symmetrischem und asymmetrischem Kanaldesign (Vorderansicht). b) Einfluss auf den Gegendruck bei variabler Ruß- und Aschebeladung³

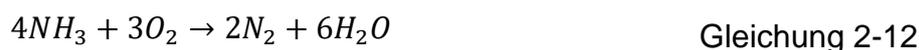
2.3.3 SCR

Über den SCR-Katalysator wird NO_x im Abgas mittels NH_3 zu Wasser und Stickstoff umgesetzt. Dieser Vorgang verläuft hauptsächlich über folgende drei Reaktionen:



Gleichung 2-9 stellt die „standard SCR“ Reaktion dar. NO_2 ist normalerweise, wie schon in Kapitel 2.1.2 erläutert, bis zu einem gewissen Grad (~10 % von NO_x) im Abgas vorhanden, bevor es ins Abgasnachbehandlungssystem eintritt. Die Reaktion in Gleichung 2-10 ist als „fast SCR“ bekannt. Über diese Reaktion wird NO_x am schnellsten umgesetzt. Es ist daher relevant den Ablauf dieser Reaktion zu begünstigen. Das optimale NO_2/NO_x -Verhältnis für die fast SCR Reaktion liegt bei 0.5. Um den NO_2 -Gehalt im Abgas zu erhöhen, wird für gewöhnlich über den DOC NO zu NO_2 oxidiert. Wenn das NO_2/NO_x -Verhältnis größer als 0.5 wird, findet auch die Reaktion in Gleichung 2-11 („slow SCR“) statt. Ein zu hoher Anteil an NO_2 sollte vermieden werden, da aus diesem N_2O entstehen kann.⁷ Auf diesen Effekt wird in Kapitel 2.3.3.5 genauer eingegangen.

Abgesehen von der Lachgas-Bildung existieren neben den SCR-Reaktionen auch andere Parallelreaktionen, welche die SCR-Effizienz mindern. Wie in Gleichung 2-12 dargestellt, kann NH_3 mit Sauerstoff zu Stickstoff und Wasser oxidiert werden. Diese Reaktion führt zwar nicht direkt zu unerwünschten Produkten, mindert aber die Menge an NH_3 , welche zum Umsatz von NO_x verfügbar ist. Gleichung 2-13 zeigt, dass die Oxidation von NH_3 auch zur Bildung von NO führen kann.⁹



⁹ (Dieselnet SCR Catalyst Technology, 2018)

Für die gewerbliche Nutzung haben sich drei Hauptgruppen von Katalysatoren durchgesetzt: extrudierte Vanadium Formulierungen sowie Eisen-Zeolithe und Kupfer-Zeolithe, die jeweils auf Cordierit Trägermaterialien beschichtet werden.¹⁰ In Abbildung 2-12 ist die erreichbare NO_x -Umsatzrate in Abhängigkeit vom NO_2/NO_x -Verhältnis für die drei genannten Technologien dargestellt. Die Daten gelten für eine Temperatur von 200 °C. Kupfer-Zeolithe zeigen die geringste Sensitivität gegenüber dem vorliegenden NO_2/NO_x -Verhältnis, während Eisen-Zeolithe und Vanadium-Katalysatoren erst ab NO_2/NO_x -Verhältnissen von rund 50 % NO_x -Umsatzraten > 90 % erreichen. Im Fall von Vanadium sinkt der NO_x -Umsatz ab NO_2/NO_x -Verhältnissen > 50 % wieder stark.⁷

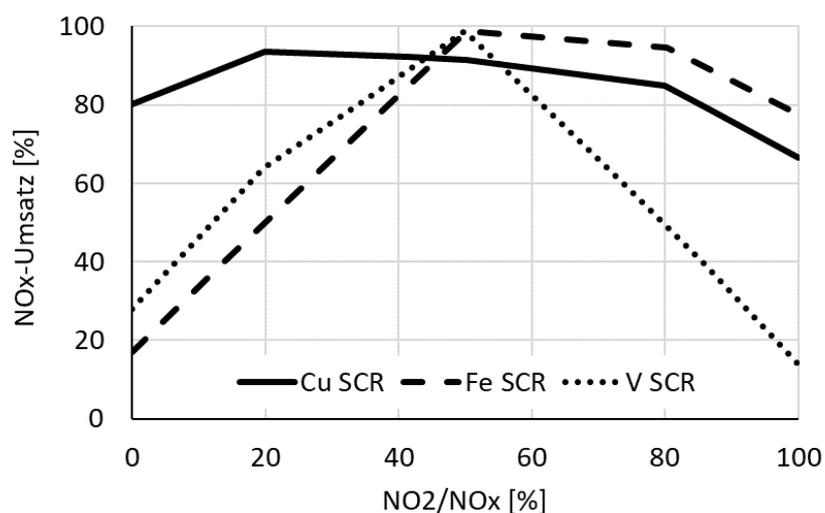


Abbildung 2-12 NO_x -Umsatz in Abhängigkeit vom NO_2/NO_x -Verhältnis vor dem SCR bei 200 °C ⁷

¹⁰ (Bin Guan, Review of state of the art technologies of selective catalytic reduction, 2014)

In Tabelle 2-2 ist ein qualitativer Vergleich zwischen Vanadium, Eisen und Kupfer SCR-Katalysatoren abgebildet. Auf die einzelnen Technologien wird in den folgenden Kapiteln genauer eingegangen.

Kriterium	V/Ti/W	Fe/Z	Cu/Z
Niedrigtemperaturperformance	o	-	+
Hochtemperaturperformance	o	+	o
Temperaturbeständigkeit	-	o	+
Performance bei niedriger NO ₂ -Konzentration	+	-	+
Performance bei hoher NO ₂ -Konzentration	-	+	o
Schwefelbeständigkeit	+	o	-
HC-Beständigkeit	+	-	+
SCR-Kosten	+	o	-
System-Gesamtkosten	+	-	o
N ₂ O-Bildung	+	o	-

+ ... beste Performance - ... schlechteste Performance

Tabelle 2-2 Vergleich zwischen V, Fe und Cu SCR-Katalysatoren (Quelle: AVL)

SCR Katalysatoren für mobile Anwendungen basieren für gewöhnlich auf Monolithen. Diese können entweder eine aktive Beschichtung tragen, oder selbst aus dem katalytisch aktiven Material bestehen. Eine schematische Darstellung dieser beiden Varianten ist in Abbildung 2-13 skizziert. Die charakteristischen Größen eines Monoliths sind dessen Zelldichte (Anzahl an Kanälen pro Flächeneinheit) und die Stärke der Zellwände. Die Zelldichte eines Monoliths wird üblicherweise in CPSI und deren Wandstärke in milli-inch (mil) angegeben. Durch die Monolith-Struktur kann die aktive Oberfläche für die katalytische Reaktion vergrößert werden, ohne einen zu großen Druckverlust zu erzeugen. Gängige Materialien für Monolithe in der Fahrzeugtechnik sind Cordierit und Stahl.⁷

Die Verwendung von Substraten mit einer Zelldichte von 600 cpsi führt zu einem rund 35 % schnelleren NO_x-Umsatz verglichen mit 400-cpsi-Substraten. Der Einsatz von Substraten mit höherer Zelldichte ist somit auch ein wesentlicher Faktor zur Verbesserung von NO_x-Konvertierungsraten in Abgasnachbehandlungssystemen.⁷

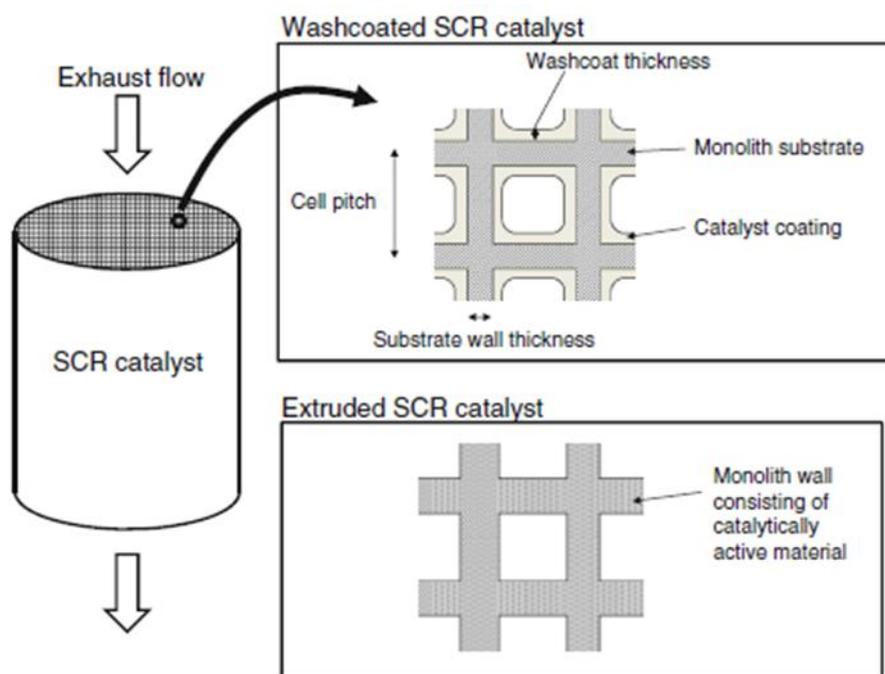
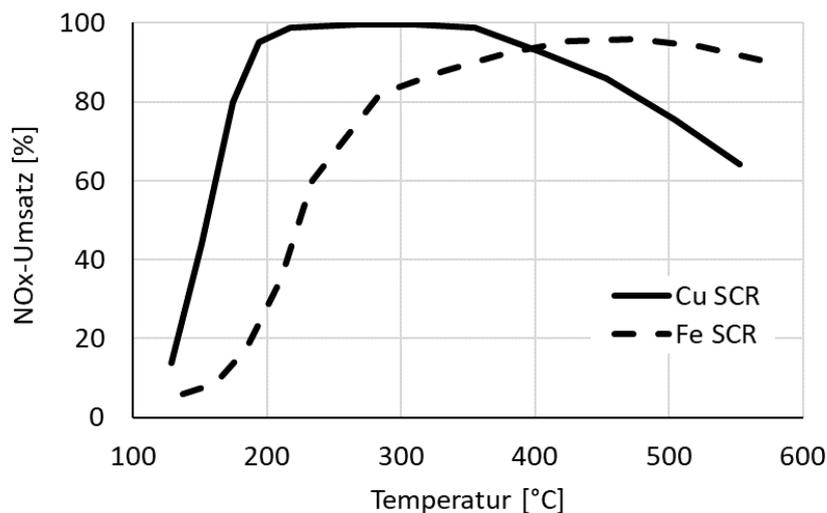


Abbildung 2-13 Aufbau eines SCR; Vergleich beschichteter Monolith und extrudierter Monolith aus katalytisch aktivem Material⁷

2.3.3.1 Cu-Zeolithe

Von den oben genannten Varianten zeigen Kupfer-Zeolithe die beste Niedrigtemperaturperformance bei gleichzeitig niedriger Sensitivität gegenüber NO_2 . Dies liegt daran, dass Cu-Zeolithe eine gute Fähigkeit zur Oberflächenoxidation von NO zu NO_2 besitzen, ohne große Einbußen durch NH_3 -Oberflächenbedeckung zu erfahren. Bei hohen Temperaturen ändert sich das Gleichgewicht der NO -Oxidation, wodurch dieser Vorteil gegenüber anderen Technologien schwindet. Die hohen Oxidationsraten an der Oberfläche von Cu-Katalysatoren führen im Hochtemperaturbereich verstärkt zur unerwünschten Oxidation von NH_3 , wodurch die deNO_x -Effizienz ab 500 °C abnimmt. Cu-Zeolithe können hohe Mengen an NH_3 einspeichern. Diese Speicherfähigkeit ist temperaturabhängig und nimmt mit steigender Temperatur ab. Bei 150 °C können rund 1.4 g/l an NH_3 im SCR eingelagert werden, wohingegen bei 350 °C nur noch etwa 0.1 g/l gespeichert werden können. Der hohen NH_3 -Speicherfähigkeit verdanken Cu-Katalysatoren ihre gute Niedrigtemperaturperformance.¹⁰ Aufgrund der guten NO_x -Umsatzraten, welche von Kupfer-Zeolithen erreicht werden können, haben sie sich in den letzten Jahren als bevorzugte Technologie in modernen Abgasnachbehandlungssystemen durchgesetzt. Abbildung 2-14 zeigt eine Gegenüberstellung der deNO_x -Effizienz von Cu-Zeolithen und Fe-Zeolithen.⁷

Abbildung 2-14 deNO_x-Effizienz von Cu- und Fe-Zeolithen¹⁰

Eine Problematik für Zeolithe stellt die hydrothermische Alterung bei hohen Temperaturen - besonders in Anwesenheit von Wasserdampf - dar. Durch diese sinkt die katalytische Aktivität und damit die deNO_x-Effizienz kontinuierlich über die Lebenszeit des Katalysators. Die Alterung von Zeolithen findet vor allem durch folgende drei Mechanismen statt: Entaluminierung, Sinterung und thermischer Zusammenbruch und der Verlust an NH₃-Speicherfähigkeit. Bei state-of-the-art Cu- und Fe-Zeolithen treten unter Normalbedingungen nur minimale Alterungserscheinungen auf. Nach einer Alterung, welche rund 190.000 Fahrzeugkilometern entspricht, fällt die NO_x-Umsatzrate für diese Technologien um ca. 10 Prozentpunkte ab.¹⁰

Kupfer-Zeolithe sind anfällig gegenüber Schwefel. Daher muss in regelmäßigen Abständen eine Entschwefelung, welche Temperaturen > 500 °C erfordert, durchgeführt werden. Diesbezüglich wurden Experimente unter Verwendung von Dieseltreibstoff mit einem Schwefelgehalt < 15 ppm durchgeführt. Diese haben gezeigt, dass die deNO_x-Effizienz des Cu-Katalysators nach 400 Betriebsstunden bei 200-300 °C zu fallen beginnt. Nach insgesamt 1300 Betriebsstunden tritt eine Performance-Verschlechterung von rund 40 % ein. Anstatt der anfänglichen 98-prozentigen Effizienz erreicht der SCR nach dieser Zeit nur mehr NO_x-Umsatzraten von etwa 60 %. Der Großteil des Schwefels lagerte sich im ersten Drittel des Katalysators in den oberen Schichten des Washcoat ab. Hauptsächlich war Ammoniumsulfat für die Vergiftung verantwortlich und für einen geringen Teil auch Kupfersulfat. Ammoniumsulfat löst sich bei Temperaturen von 400-500 °C wieder vom SCR, wohingegen zum Entfernen von Kupfersulfat

500-850 °C erforderlich sind.⁷ Aufgrund dieser Begebenheiten wirken sich die Vergiftungserscheinungen durch Schwefel vor allem im Temperaturbereich < 300 °C aus. Versuchsergebnisse zur Schwefelvergiftung von Zeolithen haben gezeigt, dass jeder Zeolith unterschiedlich auf Schwefel reagiert.¹⁰

2.3.3.2 Fe-Zeolithe

Eisen-Zeolithe weisen unter den gängigsten Katalysator-Varianten die beste Hochtemperaturperformance auf (siehe Abbildung 2-14, Vergleich Fe- und Cu-Zeolith). Diese Charakteristik ist hauptsächlich der bei Fe-Zeolithen stark reduzierten Aktivität der NH₃ Oxidation mit O₂ zuzuschreiben. Um eine zufriedenstellende Niedrigtemperaturperformance zu erreichen, bedarf es eines guten NO₂-Management. Das optimale NO₂/NO_x-Verhältnis für Fe-Zeolithe liegt bei 0.5.¹⁰ Im Vergleich zu Cu-Zeolithen haben Fe-Zeolithe lediglich eine geringe NH₃-Speicherfähigkeit (rund ein Viertel von Cu-Zeolithen). Die Regelung von Fe-Katalysatoren ist deshalb unkomplizierter, da weniger am SCR gespeichertes NH₃ mitberücksichtigt werden muss.⁷

Gegenüber Schwefel sind Eisen-Zeolithe verglichen mit Cu-Zeolithen unempfindlich, allerdings können Kohlenwasserstoffe im Abgas zu moderaten Vergiftungserscheinungen führen. Vor allem bei Kaltstarts oder wenn der DOC gealtert ist, können Kohlenwasserstoffe den SCR erreichen und sich in diesem ablagern. Bei Eisen-Zeolithen wirkt sich besonders Propen negativ auf die Bildung von NO₂ aus. Im Katalysator eingelagerte Kohlenwasserstoffe können bei ausreichend hohen Temperaturen verbrennen, wobei durch die exotherme Reaktion lokale Temperaturen von bis zu 1000 °C entstehen.¹⁰

Bei Einsatz von Eisen-Zeolithen entfällt der Hochtemperatur-Regenerationsvorgang zur Entschwefelung. Für Systeme, in welchen Abgastemperaturen in einem breiten Bereich liegen, bieten sich Kombinationen von Cu- und Fe-Zeolithen zur NO_x-Reduktion an.⁷

2.3.3.3 Vanadiumbasierte Katalysatoren

Die katalytisch aktive Komponente bei Vanadium-Katalysatoren ist V₂O₅. Dieses ist gemeinsam mit WO₃ an einen Träger aus anatasem (oktaedrische Kristallstruktur)

TiO₂ gebunden, der das Vanadium stabilisiert und die Temperaturbeständigkeit verbessert. Der V₂O₅-Gehalt am TiO₂-Träger beträgt üblicherweise 1-3 % und der WO₃-Anteil rund 10 %. Vanadium Katalysatoren sind in der Anschaffung vergleichsweise günstig und in einem Temperaturbereich von 250-500 °C zur NO_x-Konvertierung geeignet.^{7,10} Bei Temperaturen unter der Light-Off-Temperatur ist die Reaktionsrate der NO_x-Oxidation mit NH₃ sehr langsam, während im Bereich von etwa 450 °C die abnehmende Selektivität zur NO_x-Reduktion limitierend wird. In Abbildung 2-15 ist die deNO_x-Effizienz von V-Katalysatoren dargestellt. Die Niedrigtemperaturperformance ist, gleich wie bei Fe-Zeolithen, stark vom NO₂-Gehalt im Abgas abhängig. Vanadium-Katalysatoren werden hauptsächlich in Europa und in Schwellenländern eingesetzt. In Japan sind sie gänzlich verboten, während sie in den USA in landwirtschaftlichen Applikationen teilweise Verwendung finden.⁷

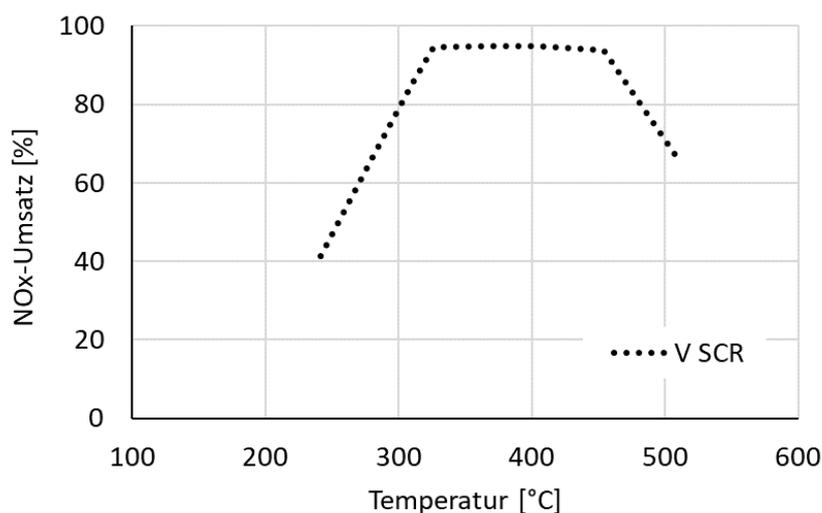


Abbildung 2-15 deNO_x-Effizienz von V-Katalysatoren⁷

Das Aktivitätsfenster von Vanadium-Katalysatoren kann durch deren V₂O₅-Gehalt beeinflusst werden. In Experimenten konnte die Light-Off-Temperatur durch eine Erhöhung des V₂O₅-Anteils von 0.78 auf 1.4 % von 267 auf 207 °C gesenkt werden. Mit ansteigendem V₂O₅-Gehalt nimmt die spezifische Katalysatoroberfläche ab. Ein hoher V₂O₅-Anteil fördert ebenfalls die Änderung der Kristallstruktur des TiO₂-Trägers von Anatas zu Rutil (tetragonale Kristallstruktur). Dadurch verringert sich die thermische Stabilität und die aktive Oberfläche des Katalysators. Ein V₂O₅-Gehalt über 3 % führt darüber hinaus zu einem Verlust der Selektivität zur NO_x-Umwandlung und erhöhter Lachgasbildung.⁷

Gegenüber Schwefel und Kohlenwasserstoffen weisen extrudierte Vanadium-Katalysatoren eine hohe Robustheit auf.¹⁰ Wenn sie Temperaturen $> 550\text{ °C}$ ausgesetzt werden, tragen sie permanente Leistungseinbußen davon. Nach einem Alterungsexperiment mit einem Vanadium-Katalysator bei 670 °C für 64 h fiel dessen deNO_x -Effizienz auf 20 %, während Fe- und Cu-Zeolithe nach einem solchen Verfahren noch NO_x -Umsatzraten von etwa 90 % aufweisen. Dieses Verhalten ist in Abbildung 2-16 dargestellt.^{7,10}

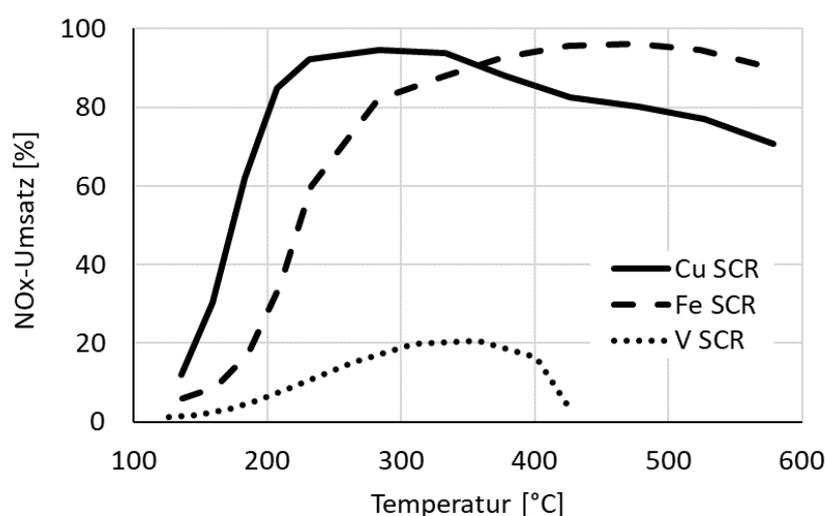


Abbildung 2-16 NO_x -Umsatzrate von Cu-, Fe- und V-SCRs in Abhängigkeit von der Temperatur. Daten zeigen die Performance nach 64 h Alterung bei 670 °C (entspricht ungefähr 190000 Fahrzeugkilometern)¹⁰

Neben dem Verlust der deNO_x -Effizienz treten auch geringe Mengen an toxischem, gasförmigem Vanadium aus dem Katalysator aus, wenn dieser hohen Temperaturen ausgesetzt ist.¹⁰ Aufgrund der schlechten Temperaturbeständigkeit können V-Katalysatoren in Systemen, welche einen DPF beinhalten, der aktiv regeneriert werden muss, nicht eingesetzt werden.

Es wurden bezüglich der Temperaturstabilität von Vanadium-Katalysatoren Fortschritte gemacht, welche Temperaturen von 750 °C am Katalysator erlauben, ohne gravierende Effizienzeinbußen herbeizuführen. Ebenfalls konnte bei diesen neuen Technologien bis zu Temperaturen von 1000 °C kein Abgang von gasförmigem Vanadium beobachtet werden.⁷

2.3.3.4 SCR-beschichtete Partikelfilter (SDPF)

Mit immer strikter werdenden Emissionslimitierungen stellt die Packungsgröße von SCR-Abgasnachbehandlungssystemen einen weiteren wichtigen Faktor dar. Um möglichst große SCR-Volumina mit möglichst kleinen Packungsgrößen vereinbaren zu können, gibt es die Möglichkeit, eine aktive SCR-Beschichtung im DPF aufzutragen. Bei dieser Anwendung werden, wie bei einem Standard-DPF, Partikel durch Wandströmung gefiltert und gleichzeitig in den Kanalwänden NO_x umgewandelt. Parallel dazu läuft auch der passive Abbrand des Filterkuchens ab. Der SCR-Washcoat ist ähnlich aufgebaut wie in einem konventionellen SCR, muss aber bezüglich Druckverlust und deNO_x -Effizienz optimiert werden. Ein großer Vorteil bei der Verwendung eines SDPF bietet sich durch die Reduktion der thermischen Masse vor dem SCR. Dadurch kann nach Kaltstarts die SCR-Light-Off-Temperatur schneller erreicht werden. Je nach Anwendung kann auf eine konventionelle SCR-Stufe verzichtet werden, was in einer großen Platzersparnis resultiert. In Systemen, in welchen dennoch eine weitere SCR-Stufe benötigt wird, kann das SCR-Gesamtvolumen vergrößert werden, ohne die Packungsgröße des Abgasnachbehandlungssystems zu verändern. In Abbildung 2-17 sind die am SDPF ablaufenden Prozesse schematisch dargestellt.¹⁰

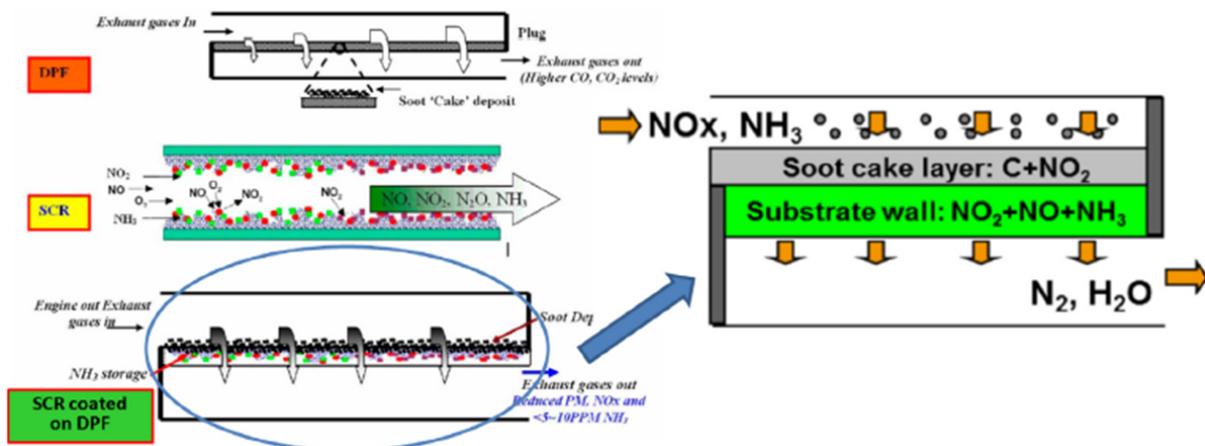


Abbildung 2-17 Darstellung der ablaufenden chemischen und physikalischen Prozesse in einem SDPF¹⁰

Wie aus den vorhergehenden Kapiteln hervorgeht, werden für SDPF-Anwendungen aufgrund der thermischen Anforderungen bevorzugt Fe- oder Cu-Zeolithe verwendet. SDPFs konnten in kalt gestarteten FTPs (Federal Test Procedure; transientser Prüfstandstest in den USA, vgl. WHTC in Europa) NO_x-Umsatzraten von 86 % erreichen, wodurch sie für Niedrigemissionsanforderungen geeignet sind.¹⁰

2.3.3.5 SCR-Sekundäremissionen (N₂O und NH₃)

N₂O

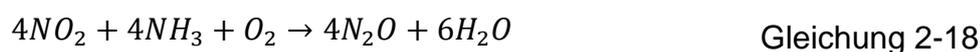
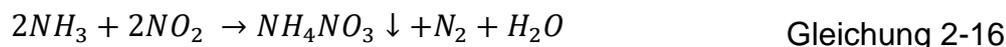
Die Bildung von N₂O im SCR stellt derzeit eine relevante Problematik dar. In den USA wurden N₂O-Emissionen von der Umweltschutzbehörde (EPA) über Treibhausgas-Limits eingeschränkt. Es wird daher starker Fokus auf die Erforschung der N₂O-Entstehung in Abgasnachbehandlungssystemen und dessen Minimierung gelegt. Bei N₂O handelt es sich um ein sehr stabiles Molekül, welches im SCR hauptsächlich durch folgende Reaktionen gebildet wird:



Die Reaktion aus Gleichung 2-14 tritt vor allem bei Temperaturen < 250 °C auf. Es handelt sich dabei um den Zerfall von Ammoniumnitrat zu Wasser und Lachgas.



Gleichung 2-15 beschreibt die Oxidation von Ammoniak auf Kuper-Zeolithen.



Gleichung 2-16 bis Gleichung 2-18 beschreiben Reaktionen des NO₂-Überschusses (damit gemeint ist die NO₂ Bilanz auf NO₂/NO_x = 50 %) mit Ammoniak. Es entsteht N₂O und in der Reaktion aus Gleichung 2-16 Ammoniumnitrat. Das Ammoniumnitrat zerfällt bei entsprechenden Temperaturen wiederum in N₂O, wie in Gleichung 2-14 dargestellt.⁷

Durch Erhöhen der Kupferbeladung in einem Cu-SCR kann der N_2O -Bildung laut Gleichung 2-14 und Gleichung 2-15 entgegengewirkt werden. Über die Auswahl einer geeigneten DOC Beschichtung, welche zu hohe NO_2 -Konzentrationen im SCR Feedgas verhindert, kann die N_2O -Bildung nach Gleichung 2-16 bis Gleichung 2-18 einschränken. Es wurden bereits Reaktionen entdeckt, mit deren Hilfe Lachgas zu Stickstoff reduziert werden kann. Für den Ablauf dieser Reaktionen sind allerdings deutlich höhere Temperaturen nötig als zur Entstehung des N_2O . Sie sind deshalb nicht zur N_2O -Reduktion einsetzbar.⁷

NH_3

Um die Effizienz von SCR-Katalysatoren gänzlich auszureizen, wird in modernen Abgasnachbehandlungssystemen in gewissen Betriebspunkten Harnstoff relativ zu NO_x überdosiert. Dadurch kann bei Auftreten von Temperaturspitzen NH_3 aus dem SCR austreten. Der NH_3 -Schlupf stellt einen Problempunkt von SCR-Abgasnachbehandlungssystemen dar und ist inzwischen in vielen Regionen der Welt gesetzlich limitiert.¹⁰ Genauer wird auf diese Problematik im folgenden Kapitel eingegangen.

2.3.4 ASC

In modernen Diesel-Abgasnachbehandlungssystemen ist dem SCR ein ASC (Ammonia Slip Catalyst) nachgeschaltet. Dieser basiert auf einer Pt/Al_2O_3 -Beschichtung und erfüllt den Zweck überschüssiges NH_3 , welches aus dem SCR austritt, zu konvertieren (entsprechend Gleichung 2-12, Gleichung 2-13 und Gleichung 2-15). Speziell in Systemen für Niedrigstemissionen, in welchen ein ANR (Ammonia-to- NO_x -ratio oder NH_3/NO_x -Verhältnis) > 1 üblich ist, sind ASCs von großer Relevanz. ASCs weisen eine gute Selektivität zur Stickstoffbildung auf.^{7,9}

Ein weit verbreiteter Ansatz zur Implementierung von ASCs stellt die Verwendung eines doppelschichtigen (dual-layer) Washcoat dar. Bei dieser Variante befindet sich die Pt/Al_2O_3 -Beschichtung des ASC auf dem gleichen Substrat wie der SCR Washcoat. Dieser Ansatz ist in Abbildung 2-18 dargestellt. Für Nutzfahrzeuganwendungen ist es üblich, die letzten 2-3 Inch des SCR-Substrates auch mit der Pt-Beschichtung zu versehen. Die Pt/Al_2O_3 -Schicht befindet sich bei dieser Variante unter der SCR-Beschichtung. NO , welches in der Pt-Schicht gebildet wird, diffundiert in die aktive

SCR-Schicht und wird darin mittels NH_3 umgesetzt. Die NH_3 -Oxidationsrate bei dual-layer Washcoats ist zwar niedriger als bei der Verwendung einer einzelnen $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht, allerdings bringt die Reduktion der Selektivität für NO maßgebliche Vorteile mit sich. Unter gewissen Rahmenbedingungen kann der ASC die NO_x -Konvertierungsrate eines Systems sogar verbessern.⁹

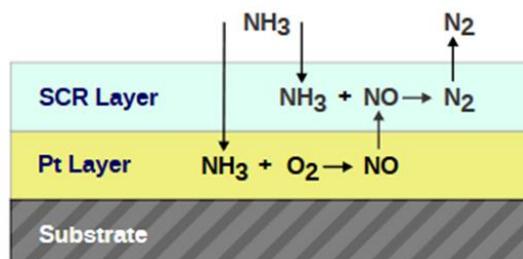
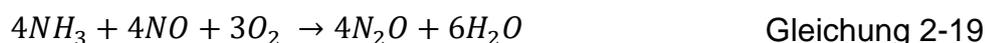


Abbildung 2-18 Aufbau eines ASC dual-layer Washcoats auf einem monolithischen Substrat

Die Bildung von N_2 stellt die thermodynamisch günstigste Reaktion im ASC dar.¹⁰ Trotzdem können bis zu 80 % des eingehenden NH_3 in N_2O umgewandelt werden, wenn genügend NO im Abgas vorhanden ist. Dazu ist in etwa eine NO -Konzentration nötig, welche doppelt so hoch ist wie die des NH_3 . Die Reaktion hinter der Lachgasbildung bei hohen NO/NH_3 -Verhältnissen ist in Gleichung 2-19 dargestellt. Hohe NO/NH_3 -Verhältnisse können beispielsweise durch eine schlechte Vermischung des Harnstoffs im Abgas vor Eintritt in den SCR entstehen. Es kann aber auch daran liegen, dass zu wenig Harnstoff ins System dosiert wird oder NH_3 am SCR teilweise zu NO oxidiert (siehe Gleichung 2-13).⁷



Die Selektivität für die Produkte N_2 , N_2O , NO und NO_2 ist in Abbildung 2-19 über vier ASC-Generationen dargestellt. In Generation 1 wurden hohe PGM-Beladungen verwendet, um eine möglichst gute Selektivität für Stickstoff zu erreichen. In weiteren Entwicklungsstufen wurden durch Reduktion der Edelmetallbeladung Kosten gesenkt. Dadurch verschlechterte sich die Selektivität für N_2 wesentlich. Die neueste Generation ist in der Lage bei hohen Temperaturen eine ähnliche N_2 -Selektivität zu liefern wie Generation 1, verwendet aber nur ein Fünftel der damals nötigen PGM-Beladung.¹⁰ Ebenfalls konnte im Niedertemperaturbereich eine Performance-Verbesserung erzielt werden.⁷

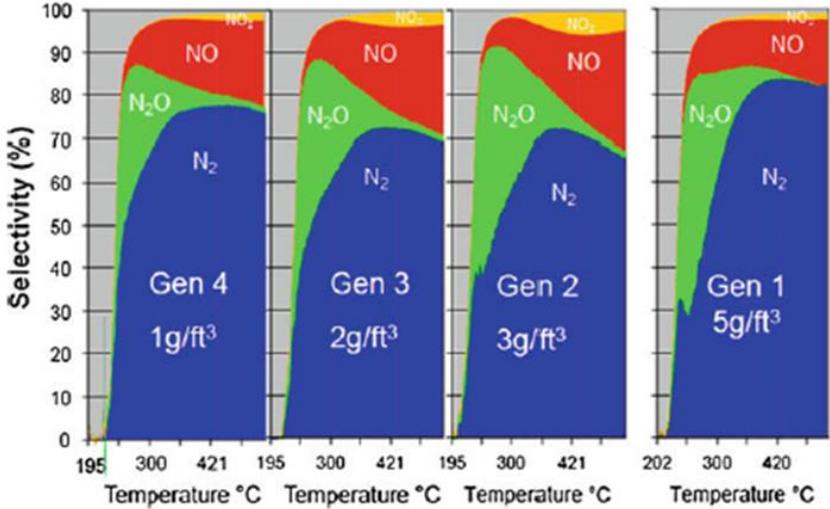


Abbildung 2-19 Entwicklung von ASCs über vier Generationen (Gen 4: neu; Gen 1: alt)⁷

2.4 Gesetzgebung

Das folgende Kapitel befasst sich mit gesetzlichen Vorgaben bezogen auf die Limitierung von Emissionen aus Dieselmotoren. Aufgrund der Relevanz für die vorliegende Arbeit wird der Fokus speziell auf die Gesetzgebung im Bereich der schweren Nutzfahrzeuge (Heavy Duty Sektor; kurz HD) gelegt. Es wird die historische Entwicklung der EURO Abgasnorm kurz umrissen, die derzeit gültigen Testzyklen WHTC und WHSC beschrieben und auf die Prozedur hinter Tests im realen Fahrbetrieb (In Service Conformity; kurz ISC) eingegangen.

2.4.1 Die EURO Abgasnorm

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die Entwicklung der EURO Abgasnorm im schweren Nutzfahrzeugbereich gegeben. Alle anschließend genannten Regulierungen gelten für sämtliche Fahrzeuge mit einer technisch zulässigen Höchstmasse über 3.5 t, welche von Kompressions- oder Gasmotoren angetrieben werden.¹¹

EURO I Standards wurden erstmals 1992 eingeführt. 4 Jahre später folgte die erste Verschärfung mit EURO II. Beide Standards waren für Linienbusse und LKW-Motoren gültig, für Linienbusse waren die Grenzwerte jedoch nicht zwingend einzuhalten. Im Jahr 2000 traten EURO III Standards in Kraft, gefolgt von EURO IV und V in den Jahren 2005 und 2008. Mit der Direktive zur Implementierung der EURO III Norm wurde auch erstmals die EEV-Abgasnorm (Enhanced Environmentally Friendly Vehicle) eingeführt. Diese rechtlich nicht bindende Norm verpflichtete schon damals zu besserer Abgasqualität als die 2009 geltende EURO V Norm. Seit 2013/14 gilt die aktuelle EURO VI Norm. Während es für PM (Partikelmasse) schon seit EURO I Grenzwertvorgaben gibt, wurden erst mit EURO VI auch Grenzwerte für PN (Partikelanzahl) eingeführt.¹¹

In nachfolgenden Tabellen (Tabelle 2-3 und Tabelle 2-4) ist die zeitliche Entwicklung der Grenzwerte über die Stufen EURO I bis EURO VI dargestellt. Es wird zwischen Limits für stationäre und transiente Testverfahren unterschieden. Einführungsdaten, welche in Tabelle 2-3 und Tabelle 2-4 für die unterschiedlichen Stufen der EURO Norm angegeben sind, sind als Daten für neue Typengenehmigungen zu verstehen.¹¹

¹¹ (Dieselnet HD EU Emission Standards, 2018)

Stufe	Einführungsdatum	Test	CO g/kWh	HC g/kWh	NO _x g/kWh	PM g/kWh	PN 1/kWh	Smoke 1/m
Euro I	1992, ≤ 85 kW		4.5	1.1	8.0	0.612		
	1992, > 85 kW	ECE R-49	4.5	1.1	8.0	0.36		
Euro II	1996.10		4.0	1.1	7.0	0.25		
	1998.10	4.0	1.1	7.0	0.15			
Euro III	1999.10 nur EEV		1.5	0.25	2.0	0.02		0.15
	2000.10	ESC & ELR	2.1	0.66	5.0	0.10 ^a		0.8
Euro IV	2005.10		1.5	0.46	3.5	0.02		0.5
Euro V	2008.10		1.5	0.46	2.0	0.02		0.5
Euro VI	2013.01	WHSC	1.5	0.13	0.40	0.01	8.0×10 ¹¹	

^a - PM = 0.13 g/kWh für Motoren mit Hubraum < 0.75 dm³ pro Zylinder und Nenndrehzahl > 3000 min⁻¹

Tabelle 2-3 EU Emissionsstandards für HD Dieselmotoren (stationär)

Stufe	Einführungsdatum	Test	CO g/kWh	NMHC g/kWh	CH ₄ ^a g/kWh	NO _x g/kWh	PM ^b g/kWh	PN ^e 1/kWh
Euro III	1999.10 nur EEV		3.0	0.40	0.65	2.0	0.02	
	2000.10	ETC	5.45	0.78	1.6	5.0	0.16 ^c	
Euro IV	2005.10		4.0	0.55	1.1	3.5	0.03	
Euro V	2008.10		4.0	0.55	1.1	2.0	0.03	
Euro VI	2013.01	WHTC	4.0	0.16 ^d	0.5	0.46	0.01	6.0×10 ¹¹

^a - nur für Gasmotoren (Euro III-V: nur Erdgas; Euro VI: Erd- und Flüssiggas)

^b - nicht gültig für Gasmotoren in Euro III-IV

^c - PM = 0.21 g/kWh für Motoren mit Hubraum < 0.75 dm³ pro Zylinder und Nenndrehzahl > 3000 min⁻¹

^d - bei Dieselmotoren THC

^e - derzeit nur für Dieselmotoren gültig

Tabelle 2-4 EU Emissionsstandards für HD Diesel- und Gasmotoren (transient)

Auf die beiden derzeit gültigen Testprozeduren WHSC und WHTC wird im folgenden Kapitel genauer eingegangen.

2.4.2 WHTC und WHSC

WHTC (World Harmonized Transient Cycle) und WHSC (World Harmonized Stationary Cycle) wurden im Zuge der „Global Technical Regulation No.4“ von der ECE-Arbeitsgruppe für Luftverunreinigung und Energie (GRPE) definiert. Es handelt sich dabei um Testverfahren zum Nachweis von Motoremissionen am Prüfstand. Die Zyklen wurden so ausgelegt, dass sie typische Betriebsbedingungen von kommerziellen Nutzfahrzeugen in der EU, den USA, Japan und Australien repräsentieren.

Der WHTC ist ein 1800 s langer transienter Test mit mehreren Schlepsegmenten. Der Test besteht aus 2 identischen Phasen mit einer 10-minütigen Unterbrechung dazwischen (Soak-Time). Die erste Phase beinhaltet einen Kaltstart des Motors. Die kumulierten Emissionen der beiden Phasen werden zur Bewertung addiert und entsprechend gewichtet. Das Ergebnis der kalten Phase wird mit 1/7 gewichtet, während das Ergebnis der warmen Phase mit 6/7 in das Zyklus-Gesamtergebnis einfließt. Abbildung 2-20 stellt den normalisierten Drehzahl- und Drehmomentverlauf des WHTC schematisch dar. Negative Werte für das Drehmoment wurden willkürlich angenommen um Schlepphasen darzustellen.¹²

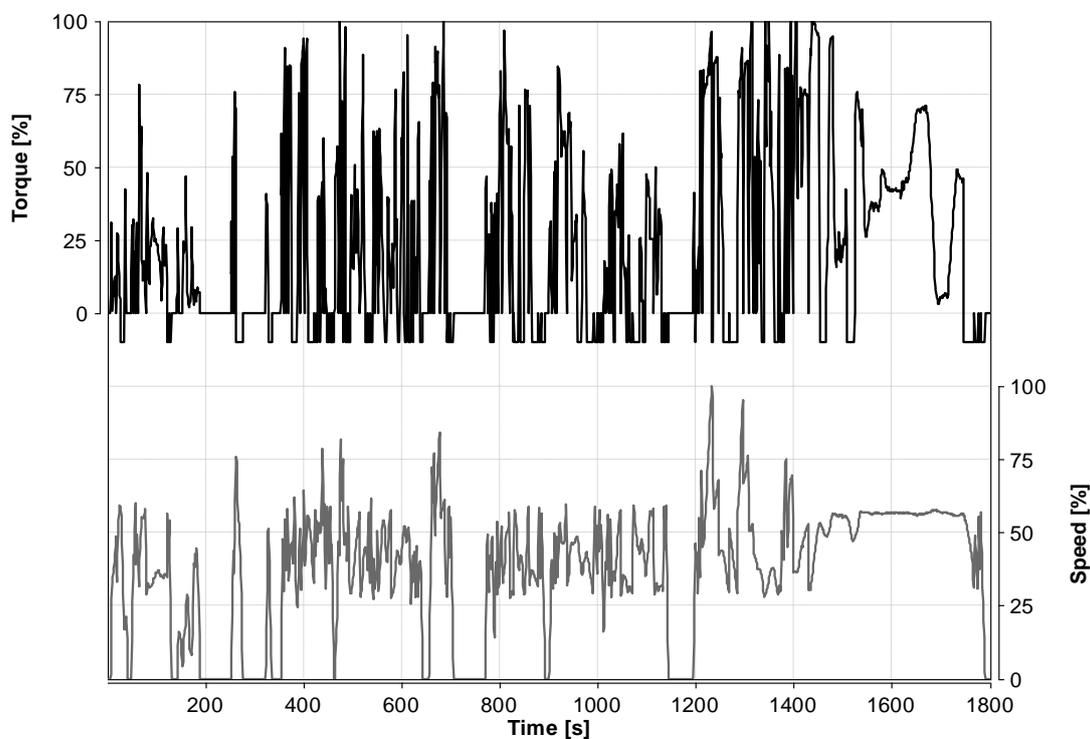


Abbildung 2-20 Schematische Darstellung des WHTC (World Harmonized Transient Cycle)

¹² (Dieselnet WHTC, 2018)

Beim WHSC handelt es sich um eine Testprozedur, in der 13 stationäre Betriebspunkte nacheinander durchlaufen werden, wobei Betriebspunkt 1 und 13 Leerlaufphasen darstellen. Insgesamt hat der Test eine Dauer von 1895 s, wobei 20 s pro Betriebspunkt für das Anfahren anberaumt werden. Zur Bewertung der Emissionen werden Motorleistung und Schadstoffemissionen über den gesamten Zyklus betrachtet. Abbildung 2-21 zeigt den normalisierten Drehzahl- und Drehmomentverlauf des WHSC.¹³

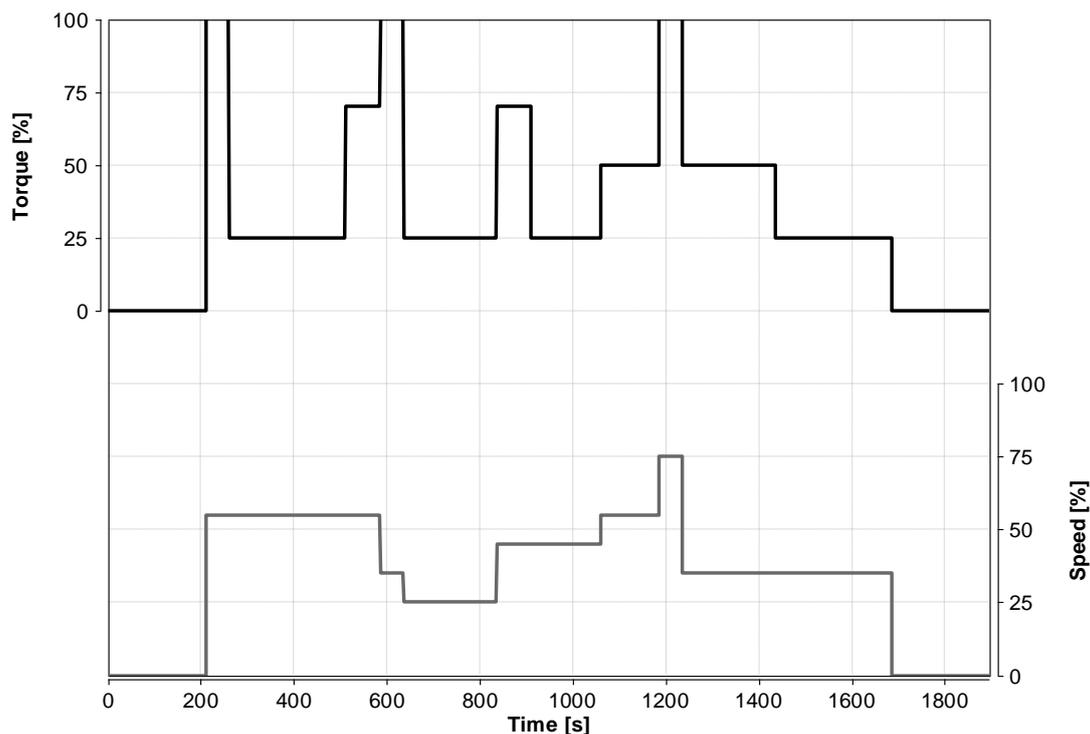


Abbildung 2-21 Schematische Darstellung des WHSC (World Harmonized Stationary Cycle)

2.4.2.1 Denormalisierung von WHTC und WHSC nach ECE/R49

Die normalisierte Drehzahl des WHTC & WHSC (Abbildung 2-20, Abbildung 2-21) kann über Gleichung 2-20, für einen gegebenen Motor anhand dessen Vollastkurve, denormalisiert werden. In die Gleichung fließen verschiedene charakteristische Drehzahlen ein, die aus der Vollastkurve des Motors bestimmt werden.¹⁴

¹³ (Dieselnet WHSC, 2018)

¹⁴ (United Nations, 2013)

$$n_{ref} = n_{norm} * (0.45 * n_{lo} + 0.45 * n_{pref} + 0.1 * n_{hi} - n_{idle}) * 2.0327 + n_{idle} \quad \text{Gleichung 2-20}$$

- n_{norm} steht in Gleichung 2-20 für die normalisierte Drehzahl in dimensionsloser Form (Prozent/100).
- n_{lo} ist die niedrigste Drehzahl bei der 55 % der Maximalleistung erreicht werden
- n_{pref} ist die Drehzahl bei 51 % des Integrals des Maximaldrehmoments zwischen n_{idle} und n_{95h}
- n_{hi} ist die höchste Drehzahl bei der 70 % der Maximalleistung erreicht werden
- n_{idle} ist die Leerlaufdrehzahl
- n_{95h} ist die höchste Drehzahl bei der 95 % der Maximalleistung erreicht werden

Das Denormalisieren des Drehmoments verläuft wie oben für die Drehzahl beschrieben. Es werden charakteristische Werte aus der Volllastkurve des Motors bestimmt, mit Hilfe welcher das Drehmoment denormalisiert wird. Die Berechnung ist in Gleichung 2-21 dargestellt.¹⁴

$$M_{ref} = \frac{M_{norm}}{100} * M_{max} + M_f - M_r \quad \text{Gleichung 2-21}$$

- M_{norm} in Gleichung 2-21 ist das normalisierte Moment in Prozent
- M_{max} ist das maximale Moment aus der Volllastkurve
- M_f ist das zu addierende Moment, welches von Zusatzgeräten verbraucht wird
- M_r ist das abzuziehende Moment, welches von Zusatzgeräten verbraucht wird

Negative Drehmomentwerte können als 40 % des maximalen positiven Moments bei der entsprechenden Drehzahl angenommen werden.¹⁴

Aus denormalisierter Drehzahl und Drehmoment können die Zyklusarbeit, Durchschnittsleistung und weitere charakteristische Daten des WHTC/WHSC berechnet werden.

2.4.3 In Service Conformity (ISC)

Mit der EURO VI Regulierung wurden zusätzlich zu Tests am Prüfstand auch Messungen im realen Fahrbetrieb durch Einsatz von mobilen Emissionsmessgeräten (PEMS (Portable Emission Measurement System)) eingeführt. Diese Tests bestehen zu unterschiedlichen Anteilen aus einer Fahrt in Stadt-, Überland- und Autobahnregionen. Ziel dieser Aufteilung ist es, repräsentative Testrouten für die jeweiligen Fahrzeugklassen zu erhalten. Die zeitbasierte Verteilung der verschiedenen Regionen ist deshalb pro Fahrzeugklasse vorgegeben (Tabelle 2-5). Die Definitionen der Fahrzeugklassen in der EU sind im Anhang auf Seite viii zu finden.¹¹

	M ₁ , N ₁	M ₂ , M ₃ , N ₂ (außer Klassen I, II, A)	M ₂ & M ₃ Klasse I, II, A	N ₃
Stadt	34%	45%	70%	30%
Überland	33%	25%	30%	25%
Autobahn	33%	30%	0%	45%

Tabelle 2-5 Zeitbasierte Zusammensetzung von ISC-Tests für Nutzfahrzeuge

2.4.3.1 Rahmenbedingungen von ISC-Tests

In der vorliegenden Arbeit wird in weiterer Folge ein Fahrzeug der Kategorie N₃ behandelt, daher gilt eine zeitliche Aufteilung von 30 % Stadtanteil, 25 % Überlandanteil und 45 % Autobahnanteil.¹⁵ Diese Vorgaben müssen mit einer Toleranz von ± 5 % pro Region eingehalten werden. Der ISC-Test muss immer im Stadtgebiet begonnen werden. Die durchschnittliche Fahrzeuggeschwindigkeit soll während des ISC-Tests in der Stadt bei 15-30 km/h, im Überland bei 45-70 km/h und auf der Autobahn über 70 km/h liegen. Zur Unterscheidung der einzelnen Regionen sind 2 Methoden vorgesehen. In einer Methode greift das Prinzip der ersten Beschleunigung. Bei dieser gilt der Stadtteil als beendet, sobald erstmals eine Geschwindigkeit von 55 km/h überschritten wird, wobei die darauffolgende Überlandregion durch eine weitere, erste Beschleunigung über 75 km/h als abgeschlossen gilt. Bei der zweiten Methode werden geographische Koordinaten herangezogen, um die Fahrzeugposition und somit die aktuell durchfahrene Region zu bestimmen.¹⁷ Während des Tests müssen Kohlenstoffmonoxid, Kohlenwasserstoffe und Stickstoffoxide (NO_x) mit Hilfe der mobilen Emissionsmesstechnik

aufgezeichnet werden. Zusätzlich dazu muss auch der Kohlenstoffdioxid-Ausstoß aufgezeichnet werden, um die Auswertungsmethode des ISC-Tests basierend auf CO₂-Fenstern, welche im Kapitel 2.4.3.2 erläutert wird, zu ermöglichen. Bis zum Erreichen der Mindestlänge des Tests müssen sämtliche Messungen ununterbrochen durchgeführt werden. Die erforderliche Mindestlänge kann basierend auf CO₂-Ausstoß oder geleisteter Zyklusarbeit bestimmt werden. In beiden Fällen dient der WHTC als Referenzzyklus. Je nach gewählter Methode gilt die Mindestlänge als erreicht, wenn entweder das Vierfache der Zyklusarbeit oder der vierfache CO₂-Ausstoß eines WHTC erreicht wurde. Die maximale Länge eines ISC-Tests wird durch Erreichen der achtfachen WHTC Zyklusarbeit oder des achtfachen CO₂-Ausstoßes eines WHTC bestimmt.¹⁵ Der Umgebungsdruck während der Durchführung von ISC-Messungen muss $\geq 82,5$ kPa sein. Die Umgebungstemperatur muss bei mindestens 266 K (-7 °C) liegen und darf gleichzeitig die Temperatur aus Gleichung 2-22 nicht überschreiten.¹⁶

$$T = -0.4514 * (101.3 - p_u) + 311 \quad \text{Gleichung 2-22}$$

T bezeichnet in dieser Gleichung die Temperatur in K, wobei p_u für den Umgebungsdruck in kPa steht.

Die Durchführung einer ISC-Messung ist erstmalig im Zuge des Typengenehmigungsverfahrens eines Fahrzeuges vorgeschrieben. Dieser erste Test wird bei einer Fahrzeugbeladung von 50-60 % durchgeführt, während für spätere ISC-Tests die Fahrzeugbeladung zwischen 10 und 100 % liegen kann. Diese relative Beladungsangabe bezieht sich auf die Differenz zwischen zulässigem Fahrzeuggesamtgewicht und dem Leergewicht des Fahrzeuges in fahrbereitem Zustand. ISC-Tests müssen nach dem Typengenehmigungsverfahren mindestens alle zwei Jahre über die vorgesehene Lebensdauer eines Fahrzeuges durchgeführt werden.¹⁷

2.4.3.2 Emissionsbewertung von ISC-Tests

Die Evaluierung der Messdaten im ISC beginnt entweder sobald die Kühlwassertemperatur des Fahrzeuges 343 K (70 °C) erreicht hat, oder sie sich für 5 min mit einer max. Schwankungsbreite von ± 2 °C um einen Wert stabilisiert hat, spätestens jedoch

¹⁵ (Official Journal of the European Union, 2018)

¹⁶ (Official Journal of the European Union, 2011)

¹⁷ (Official Journal of the European Union, 2016)

15 min nach dem Motorstart. Die Bestimmung der Rundenzusammensetzung beginnt ebenfalls erst ab diesem Zeitpunkt, jedoch muss diese Aufwärmphase im städtischen Fahrbetrieb absolviert werden. Zusätzliche Heizmaßnahmen, um das Abgasnachbehandlungssystem auf Temperatur zu bringen, sind verboten.¹⁷

Schadstoff	Max. Conformity-Faktor
CO	1.50
THC	1.50
NO _x	1.50

Tabelle 2-6 Maximal zulässiger Conformity-Faktor pro Abgaspezies

Zur Bewertung der Emissionen wird ein sogenannter Conformity-Faktor (CF) für jede Abgaspezies bestimmt. Der Conformity-Faktor ist als Verhältnis der Realemissionen zum entsprechenden WHTC-Grenzwert definiert. Maximal zulässige CF-Werte sind in Tabelle 2-6 aufgelistet. Zur Berechnung werden sich bewegende Fenster nach der Methode des gleitenden Durchschnittes verwendet. Die emittierten Schadstoffmassen werden somit nicht aus der Gesamtmessung, sondern aus einzelnen Abschnitten dieser bestimmt. Die Länge dieser Fenster kann über CO₂-Emissionen oder über die geleistete Arbeit bestimmt werden. Als Referenzwerte dienen die Zyklusarbeit bzw. die CO₂-Emission eines WHTC. Neue Fenster beginnen mit derselben Frequenz, mit welcher auch die Messdaten aufgezeichnet wurden, mindestens aber mit einer Frequenz von 1 Hz.¹⁷

In Abbildung 2-22 ist die Methode des gleitenden Durchschnittes basierend auf der geleisteten Arbeit schematisch dargestellt. Ein Fenster ist nach dieser Methode gültig, wenn die Arbeit zwischen Start- und Endzeitpunkt mindestens der Zyklusarbeit eines WHTC (im Folgenden als W_{ref} bezeichnet) entspricht. Es muss somit gelten:

$W(t_2) - W(t_1) \geq W_{ref}$. Zusätzlich dazu ist ein Fenster erst gültig, wenn die durchschnittliche Leistung über der aktuell geltenden Leistungsgrenze von 10 % liegt.¹⁷

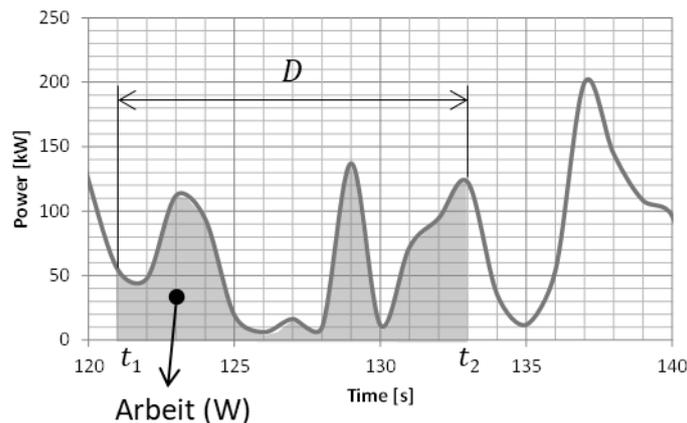


Abbildung 2-22 Fenster nach gleitendem Durchschnitt basierend auf geleisteter Arbeit

Aus Referenzarbeit des WHTC und der minimalen Leistungsgrenze kann die maximale Dauer (im Weiteren als D bezeichnet) eines Fensters anhand von Gleichung 2-23 berechnet werden.

$$D_{max} = 3600 * \frac{W_{ref}}{0.1 * P_{max}} \quad \text{Gleichung 2-23}$$

Die Zahl 0.1 in Gleichung 2-23 bringt den Wert der minimalen Leistungsgrenze (10 %) in die Berechnung ein. P_{max} bezeichnet darin die maximale Motorleistung. Fenster mit einer Dauer $> D_{max}$ sind automatisch ungültig.¹⁷ Die Emissionen eines Fensters werden als leistungsspezifische Werte angegeben und laut Gleichung 2-24 wie folgt berechnet:

$$e = \frac{m}{W(t_2) - W(t_1)} \quad \text{Gleichung 2-24}$$

In Gleichung 2-24 bezeichnet m die emittierte Masse einer Abgasspezies. Aus den leistungsbezogenen Emissionen e können in weiterer Folge die CF-Werte pro Fenster laut folgender Formel berechnet werden:

$$CF = \frac{e}{L} \quad \text{Gleichung 2-25}$$

In Gleichung 2-25 stellt L das gesetzliche Limit für die Emission einer Abgasspezies und e die tatsächlich emittierte Masse dar. Diese Grenzwerte entsprechen jenen Werten, die in Kapitel 2.4.1 für den WHTC vorgestellt wurden.¹⁶

Für den Fall, dass die Fenster zur Auswertung basierend auf dem CO₂-Ausstoß definiert werden, müssen die momentanen CO₂-Emissionen zeitlich integriert werden. Anstelle der Arbeit des WHTC gilt hier der CO₂-Ausstoß als Referenzgröße (im Folgenden als m_{CO_2ref} bezeichnet). Bei dieser Methode ist ein Fenster gültig, wenn:

$$m_{CO_2}(t_2) - m_{CO_2}(t_1) \geq m_{CO_2ref}.$$

Abbildung 2-23 zeigt diese Methode schematisch.

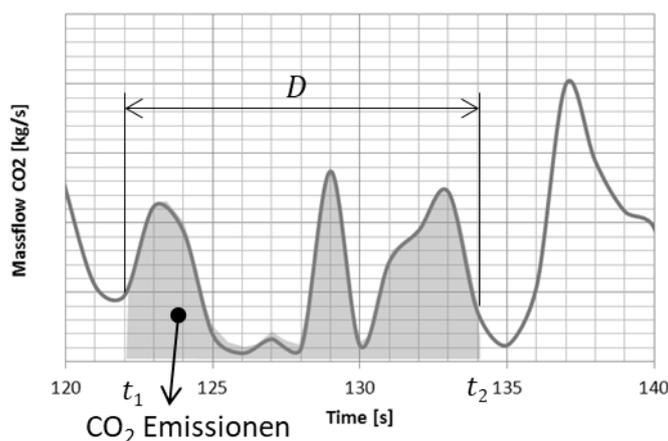


Abbildung 2-23 Fenster nach gleitendem Durchschnitt basierend auf CO₂-Emissionen

Der CF-Wert pro Fenster berechnet sich bei dieser Methode aus:

$$CF = \frac{CF_I}{CF_C} \quad \text{Gleichung 2-26}$$

$$\text{mit } CF_I = \frac{m}{m_{CO_2}(t_2) - m_{CO_2}(t_1)} \quad \text{Gleichung 2-27}$$

$$\text{und } CF_C = \frac{m_L}{m_{CO_2ref}} \quad \text{Gleichung 2-28}$$

CF_I wird als „in service ratio“ bezeichnet und CF_C als „certification ratio“. Die gemessenen Emissionen der unterschiedlichen Spezies stehen als m in Gleichung 2-27. Die WHTC-Emissionslimits pro Spezies fließen als m_L in Gleichung 2-28 ein.

Ein ISC-Test ist gemäß aktueller Gesetzeslage insgesamt nur gültig (nach EURO VI D), wenn mindestens 50 % aller Fenster gültig sind und auch in der reinen Stadtfahrt nach Anwendung der 90-Perzentile Regel mindestens ein gültiges Fenster verbleibt. Dies bedeutet, dass die 90. Perzentile der gemessenen Emissionen aller

gültigen Fenster nicht größer sein darf als $CF * L$ und sich unter den gültigen Fenstern mindestens eines aus dem reinen Stadtbetrieb befinden muss.¹⁷

Wie in Tabelle 2-6 gezeigt, liegt der maximal zulässige Conformity-Faktor gasförmiger Emissionen bei 1.5. Für partikuläre Emissionen wurde bisher noch kein solcher Faktor definiert. Die Einführung von PEMS PM oder PN Messungen wird derzeit diskutiert, ist mit jetziger Messtechnologie allerdings nicht mit ausreichender Zuverlässigkeit durchführbar (Stand November 2018).¹¹

2.4.3.3 ISC Kriterienkatalog in der EURO VI Norm

Tabelle 2-7 zeigt den Kriterienkatalog des ISC für unterschiedliche Stadien der EURO VI Abgasnorm.

Kriterium	EURO VI C (vor 01.01.2017) ^a	EURO VI C (nach 01.01.2017)	EURO VI D
Leistungsgrenze für gültige Fenster	20 %	20 %	10 %
Gültigkeit des ISC Tests	50 % aller Fenster müssen gültig sein; wenn nicht, kann die Leistungsgrenze in 1 % Schritten auf 15 % gesenkt werden	50 % aller Fenster müssen gültig sein; wenn nicht, kann die Leistungsgrenze in 1 % Schritten auf 15 % gesenkt werden	50 % aller Fenster müssen gültig sein; min. 1 gültiges Fenster (NOx basierend) im Stadtteil nach Anwenden der 90-Perzentile Regel
Fahrzeugbelastung bei Typengenehmigung	50-60 % der Maximalbelastung	50-60 % der Maximalbelastung	50-60 % der Maximalbelastung
Fahrzeugbekadung in späteren ISC Tests	50-60 % der Maximalbelastung	10-100 % der Maximalbelastung	10-100 % der Maximalbelastung
ISC Rundenlänge	min. 5 Mal die Zyklusarbeit oder der CO ₂ Ausstoß eines WHTC	4-8 Mal WHTC Arbeit oder CO ₂ ^b (4-7 Mal WHTC Arbeit oder CO ₂ ^c)	4-8 Mal WHTC Arbeit oder CO ₂ ^b (4-7 Mal WHTC Arbeit oder CO ₂ ^c)
Kühlmitteltemperatur zu Beginn des Tests	-	T ≤ 303 K (30 °C). Falls Umgebungstemperatur > 30 °C, dann darf die Kühlwassertemperatur max. 2 °C darüber liegen	T ≤ 303 K (30 °C). Falls Umgebungstemperatur > 30 °C, dann darf die Kühlwassertemperatur max. 2 °C darüber liegen
Start der Messdatenauswertung	Kühlwassertemperatur ≥ 343 K (70 °C) oder stabil (+/- 2 K) für 5 Minuten, aber spätestens 20 Minuten nach Motorstart	Kühlwassertemperatur ≥ 343 K (70 °C) oder stabil (+/- 2 K) für 5 Minuten, aber spätestens 15 Minuten nach Motorstart	Kühlwassertemperatur ≥ 343 K (70 °C) oder stabil (+/- 2 K) für 5 Minuten, aber spätestens 15 Minuten nach Motorstart
Teststart im Stadtgebiet	Empfohlen	Verpflichtend	Verpflichtend
Unterscheidung zwischen Stadt, Überland und Autobahn	Fahrzeuggeschwindigkeit	- - Geographische Koordinaten - Methode der ersten Beschleunigung	- Geographische Koordinaten - Methode der ersten Beschleunigung
Nötige Durchschnittsgeschwindigkeiten	-	Stadt: 15-30, Überland: 45-70 & Autobahn > 70 km/h	Stadt: 15-30, Überland: 45-70 & Autobahn > 70 km/h

^a Euro VI C ohne Berücksichtigung der Änderungen (EU) 2016/1718

^b Commission Regulation (EU) 2018/932 of 29 June 2018 amending Regulation (EU) No 582/2011

^c vor 22.07.2018

Tabelle 2-7 Zeitliche Entwicklung des ISC-Kriterienkatalogs

2.4.3.4 Ausblick auf ISC-Tests in EURO VI E

EURO VI E soll voraussichtlich September 2020 in Kraft treten und wird weitere Verschärfungen für ISC-Tests mit sich bringen. Maßnahmen zur Einführung von Partikelanzahlmessungen als weiteres Testkriterium werden aller Voraussicht nach im Zuge dieser Änderung eingeführt. Der maximal zulässige Conformity-Faktor für PN wird sich aufgrund höherer Messunsicherheiten bei der Partikelanzahlmessung nach derzeitigem Stand auf 1.63 belaufen (Dezember 2018).¹⁸

Zusätzlich zu den, in EURO VI D geltenden, Anforderungen an einen ISC-Test soll zukünftig auch der Kaltstart in die Emissionsbewertung miteinfließen. Die Datenauswertung soll dazu bereits bei Erreichen einer Kühlwassertemperatur von 30 °C beginnen. Die Emissionsbewertung ab 30 °C Kühlwassertemperatur stellt die kalte Phase des Tests dar. Damit ein ISC Test nach EURO VI E gültig ist, muss mindestens ein gültiges Fenster vor Erreichen einer Kühlwassertemperatur von 70 °C starten. Zur Bestimmung des CF soll ein ISC-Testlauf künftig in zwei Phasen bewertet werden.¹⁸

Zunächst wird der Testbereich vom Erreichen der Kühlwassertemperatur von 30 °C bis hin zu einer Kühlwassertemperatur von 70 °C bewertet. Dies führt zu einem CF für die Kaltstartphase (folglich als CF_{cold} bezeichnet). Bei der Bestimmung des CF_{cold} , entfällt die 90-Perzentile Regel, wodurch alle gültigen Fenster auf den Conformity-Faktor Einfluss nehmen. In einem zweiten Auswertungsschritt wird der ISC-Testlauf, wie in EURO VI D definiert, bewertet. Als Startbedingung gilt das Erreichen einer Kühlwassertemperatur von 70 °C. Aus dieser Auswertung ergibt sich ein CF für die warme Phase des Tests (folglich als CF_{warm} bezeichnet). Zur Bestimmung des CF_{warm} kommt die 90-Perzentile Regel zum Einsatz. Der Gesamt-CF ergibt sich als Summe von CF_{cold} und CF_{warm} , wobei CF_{cold} mit 14 und CF_{warm} mit 86 % gewichtet werden. Die Berechnung des CF für EURO VI E ist in Gleichung 2-29 dargestellt.¹⁸

$$CF = 0.14 * CF_{cold} + 0.86 * CF_{warm}$$

Gleichung 2-29

¹⁸ (European Commission, 2018)

3 Simulationsumgebung und Durchführung

Im folgenden Kapitel wird der praktische Teil der Arbeit genauer erläutert. Im speziellen wird auf das Aufsetzen der Fahrzeugsimulation und der ISC-Testrunden in VECTO, sowie auf die Simulation von Motor und Abgasnachbehandlungssystem eingegangen. Abbildung 3-1 stellt den vorgesehenen Workflow der Arbeit schematisch dar.

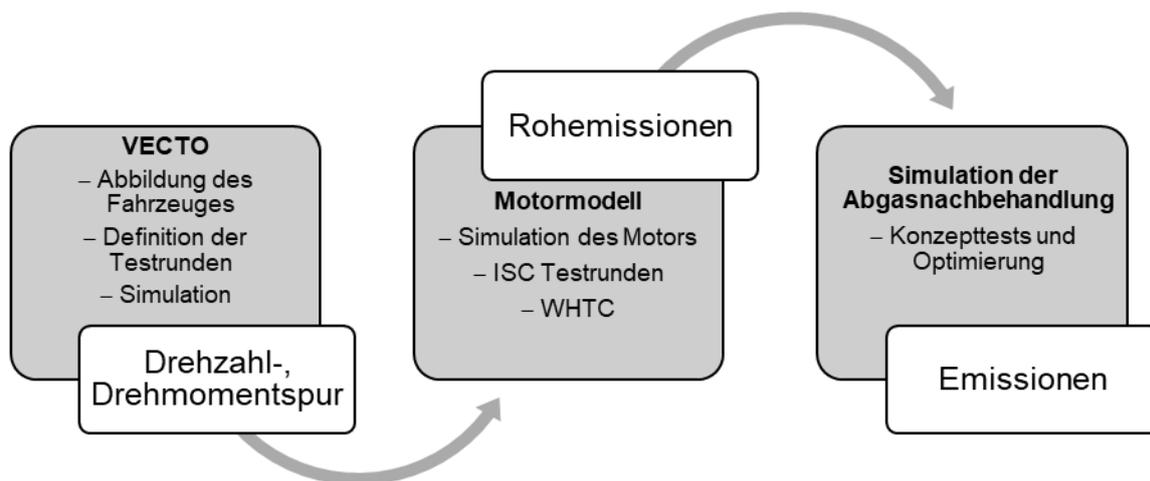


Abbildung 3-1 Vorgesehener Workflow

3.1 Die Test-Matrix

Die nachfolgenden Tabellen geben einen kurzen Überblick über den Umfang der Konzeptstudie. Tabelle 3-1 fasst relevante Informationen bezüglich der untersuchten Fahrzeug- und Motoreinstellungen sowie Testzyklen zusammen.

Fahrzeug und Motor	
Nennleistungen	220 kW, 331 kW
Zyklen	WHTC, ISC-Testrunden
Heizmaßnahmen	2 Varianten in WHTC und ISC
Fahrzeugbeladung im ISC	10, 25, 50, 75 & 100 %

Tabelle 3-1 Testmatrix Fahrzeug und Motor

Tabelle 3-2 zeigt eine Auflistung der analysierten Abgasnachbehandlungssysteme.

Abgasnachbehandlung		
Name	Anzahl SCR-Stufen	Charakteristika
AGN1	1	EURO VI Referenzsystem
AGN2	1	SDPF-System
AGN3	2	motornaher 1. SCR-Stufe
AGN4	2	1. SCR-Stufe vor DOC

Tabelle 3-2 Untersuchte Abgasnachbehandlungssysteme

Die untersuchten Systeme sind in Abbildung 3-2 schematisch dargestellt. Die Katalysatorgrößen wurden in dieser Abbildung zur besseren Übersicht willkürlich dargestellt und spiegeln nicht die tatsächlich gewählten Größenverhältnisse wider. Das Abgas durchströmt die Systeme in der Abbildung von links nach rechts. Dreiecke in der Grafik stellen Harnstoff-Injektoren dar. Auf die einzelnen Systeme wird in Kapitel 3.4.2 genauer eingegangen.

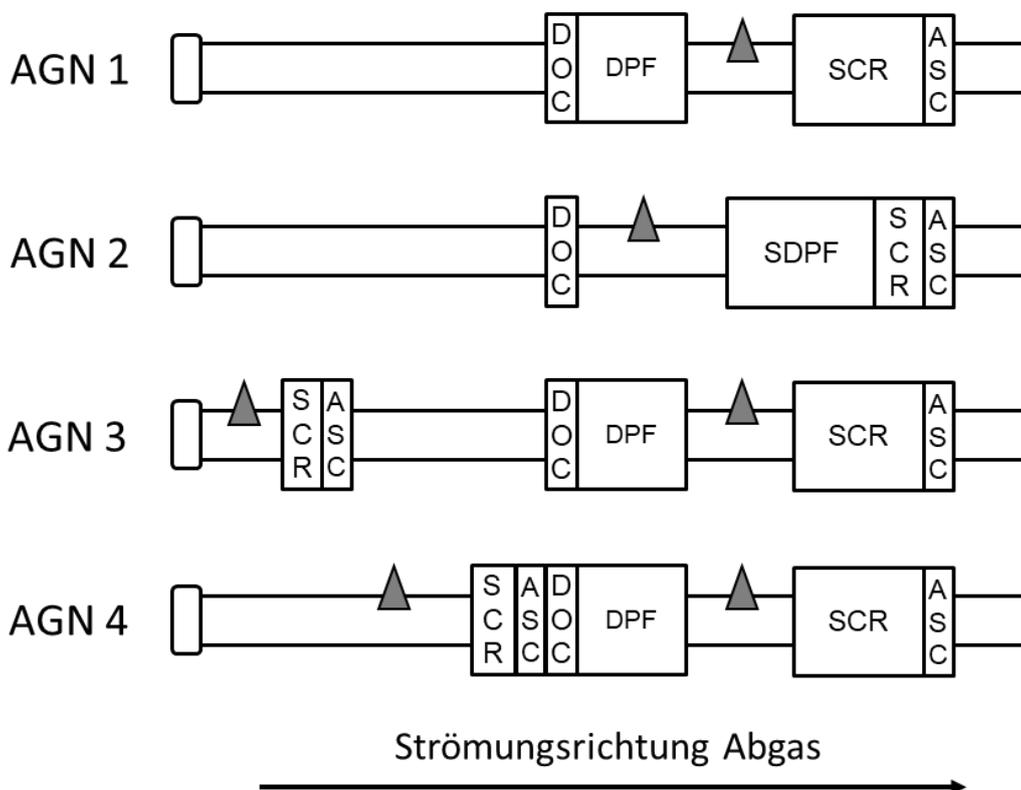


Abbildung 3-2 Schematische Darstellung der untersuchten Systemkonzepte

In Tabelle 3-3 sind die Gesetzgebungen, nach welchen die Systeme bezogen auf ihre Performance in ISC-Tests bewertet werden, aufgelistet.

Gesetzgebungen
EURO VI C (vor 01.01.2017)
EURO VI C (nach 01.01.2017)
EURO VI D
EURO VI E (basierend auf Entwürfen der Europäischen Union, Stand Dezember 2018)

Tabelle 3-3 Betrachtete Gesetzgebungen

3.2 Fahrzeugsimulation in VECTO

In diesem Kapitel wird auf die Simulation des Fahrzeuges in VECTO und die Erstellung der ISC-Testrunden eingegangen.

3.2.1 Definition des Fahrzeuges

Zur Simulation des Fahrzeuges wurde das VECTO Tool (Version 3.3.0.1250), entwickelt für die Europäische Kommission für nachhaltigen Transport, verwendet. Die Software ermöglicht es, Fahrzeuge abzubilden und Testfahrten zu simulieren. In der Fahrzeugsimulation wird der gesamte Leistungsfluss vom Motor über das Getriebe bis zur übertragenen Energie auf die Reifen modelliert. Essentielle Parameter wie Rollreibung, Luftwiderstand und die Schaltstrategie fließen in die Berechnung ein.

Ziel in dieser Arbeit war es, einen LKW der Fahrzeugklasse N₃ abzubilden um ISC-Testrunden zu simulieren. Sämtliche Spezifikationen im Modell wurden entsprechend gesetzt, um einen modernen 40-Tonner zu repräsentieren. Im Zuge der Simulation der ISC-Testfahrten wurde die Beladung des Fahrzeuges variiert. Dazu wurde angenommen, dass das Leergewicht des Fahrzeuges 7.5 t beträgt und ein maximales Gesamtzuggewicht von 40 t zulässig ist. Es wurde ein Motor mit zwei unterschiedlichen Leistungsvarianten verwendet. Abbildung 3-3 zeigt Volllast- (VL) und Schleppkurven der beiden verwendeten Varianten mit Nennleistungen von 220 und 331 kW.

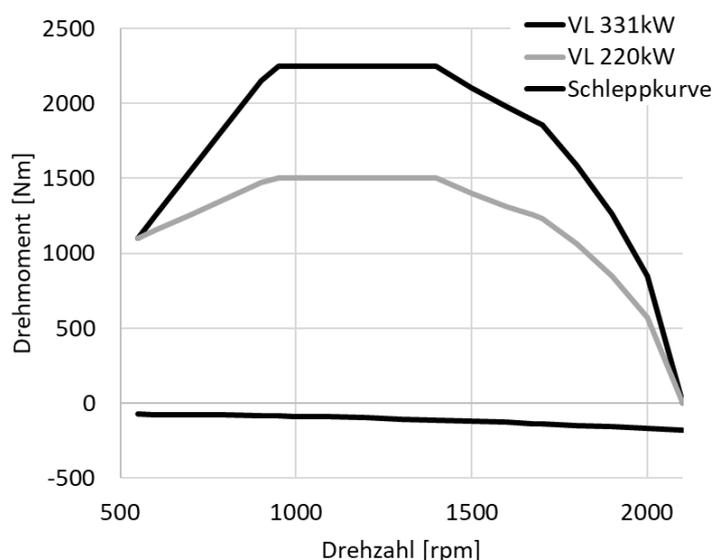


Abbildung 3-3 Volllast- und Schleppkurve 220 und 331 kW Nennleistung

Bei beiden Leistungsvarianten liegt die Nenndrehzahl bei 1675 rpm. Die in Abbildung 3-3 gezeigte Schleppkurve ist für beide Nennleistungen ident. Der Motor arbeitet mit AGR und VTG (variable Turbinengeometrie) und hat ein Hubvolumen von 2 Liter pro Zylinder.

Nachdem Fahrzeug- und Motorcharakteristiken im VECTO-Modell definiert waren, wurde eine Vergleichsrechnung zur Modellvalidierung durchgeführt. Dazu wurden Messdaten eines vergleichbaren LKW herangezogen. Die Referenzdaten beinhalten die Fahrzeuggeschwindigkeit, die zurückgelegte Strecke sowie das Geländeprofil. Diese Informationen sind nötig, um in VECTO eine Testfahrt definieren zu können. Bei der getesteten Runde handelt es sich um eine Autobahnfahrt mit einer Teilstrecke im Freiland. Das Vergleichsfahrzeug hatte eine Motorisierung welche der zuvor gezeigten Nennleistung von 330 kW ungefähr entspricht. Abbildung 3-4 bis Abbildung 3-6 zeigen einen Vergleich von Fahrzeuggeschwindigkeit, Motordrehzahl und Drehmoment zwischen der VECTO Simulation und dem Referenzfahrzeug.

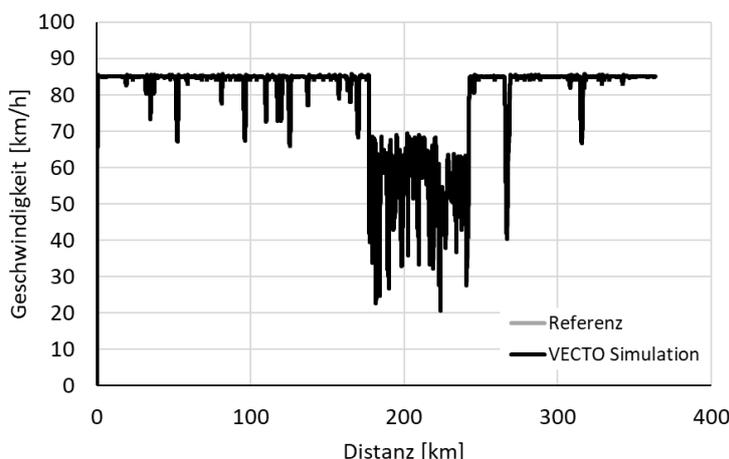


Abbildung 3-4 VECTO Simulation vs. Referenz: Fahrzeuggeschwindigkeit

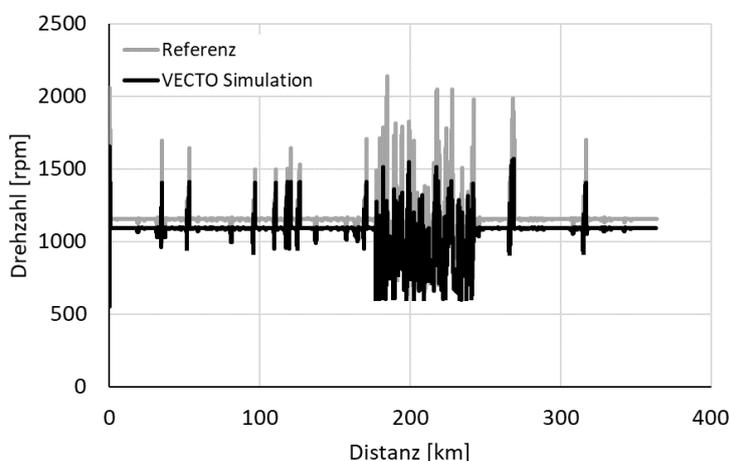


Abbildung 3-5 VECTO Simulation vs. Referenz: Motordrehzahl

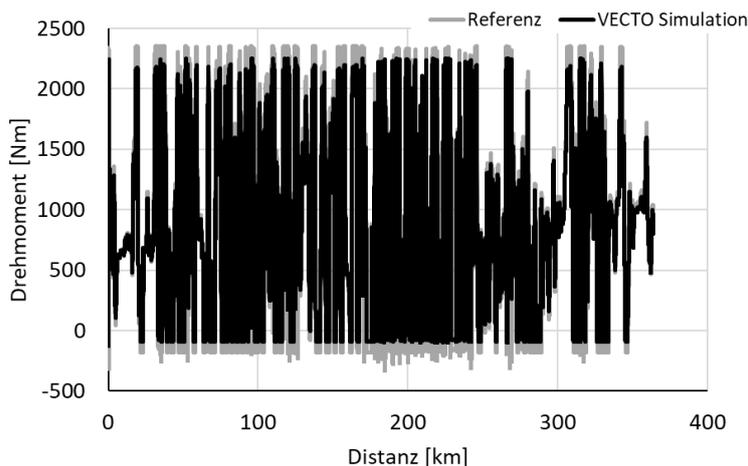


Abbildung 3-6 VECTO Simulation vs. Referenz: Drehmoment

Der Vergleich der Fahrzeuggeschwindigkeiten, ersichtlich in Abbildung 3-4, zeigt, dass das Fahrzeug in der Simulation gut in der Lage ist, dem vorgegebenen Geschwindigkeitsprofil zu folgen. Die Motordrehzahl der Simulation liegt im Schnitt unter jener aus der Referenzmessung. Ein Grund dafür kann die vergleichsweise niedrig gewählte Achsübersetzung im VECTO-Modell sein. Der Verlauf von Drehzahlspitzen und Minimalwerten entspricht den Referenzdaten. Daraus lässt sich schließen, dass Beschleunigungen und Bremsphasen realitätsnah abgebildet werden. Ähnliches gilt für den Trend des Drehmoments über die Testfahrt. Dieser ist zwischen Simulation und Referenzmessung gut vergleichbar, jedoch unterscheiden sich die Spitzenwerte. Dies liegt an den unterschiedlichen Motorspezifikationen der beiden Fahrzeuge.

3.2.2 Erstellung der ISC-Testrunden

Nachdem der LKW in VECTO definiert war, konnten die ISC-Testrunden generiert werden. Basis zur Erstellung dieser Runden sind Messdaten von realen ISC-Testfahrten aus der Fahrzeugklasse N₃. Damit die Testrunden für die spätere Emissionsbewertung gültig sind, mussten folgende, in Kapitel 2.4.3.1 erwähnte, Kriterien bereits bei der Erstellung der Runden berücksichtigt werden:

- Zeitbasierte Aufteilung von Stadt, Überland & Autobahn: 30, 25 & 45 % (± 5 %)
- Rundenlänge der ISC Testfahrt: 4 bis 8 Mal die Arbeit eines WHTC (WHTC-Arbeit 220 kW: 20.07 kWh; WHTC-Arbeit 331 kW: 30.56 kWh; bestimmt gemäß Kapitel 2.4.2.1)

- Mindestens ein gültiges Fenster im reinen Stadtbetrieb
 - ❖ Erreichen der minimalen Leistungsgrenze (10 % der Maximalleistung)
 - ❖ Die Arbeit von mindestens einem WHTC muss im Stadtteil geleistet werden

Da die Basismessungen nach EURO VI C durchgeführt wurden, mussten sie angepasst werden, um den seit 22. Juli 2018 geltenden Kriterien bezüglich zeitlicher Aufteilung der Regionen und maximaler Testlänge gerecht zu werden. Neben den Messdaten, welche Fahrzeuggeschwindigkeit und die zurückgelegte Distanz beinhalten, waren auch die Routeninformationen bekannt. Mit Hilfe dieser Daten konnte das Geländeprofil der ISC-Testrunden den Messdaten angepasst werden. Dafür wurde ein Tool verwendet (<https://www.geo.ebp.ch/gelaendeprofil>), welches es ermöglicht, Höhenprofile aus Google Maps zu exportieren. Abbildung 3-7 zeigt die Streckendaten der Basismessung. Die oberen beiden Grafiken der Abbildung stellen das Steigungs- beziehungsweise Höhenprofil der Testrunde dar, während die vorletzte Grafik den Geschwindigkeitsverlauf zeigt. Ganz unten sind Informationen über die aktuelle Region, bestimmt nach der Methode der ersten Beschleunigung, dargestellt.

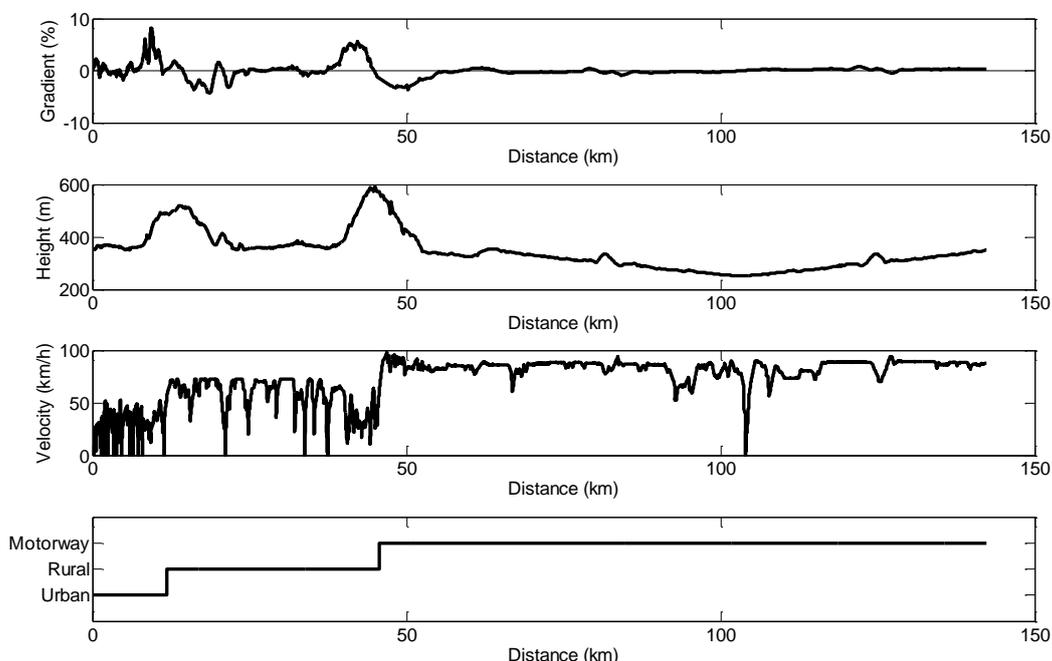


Abbildung 3-7 N₃ ISC Basismessung (Stand EURO VI C)

Bei Betrachtung des Geschwindigkeitsprofils fallen im Stadtteil viele Start-Stopp Vorgänge auf, deren Anzahl in der Überlandregion stark abnimmt. Im Autobahnteil fällt die Geschwindigkeit nur einmalig beim Umkehren des Fahrzeugs stark ab. Die Durchschnittsgeschwindigkeiten in den Regionen liegen bei 22 km/h im Stadtteil, 56 km/h im Überland und 82 km/h im Autobahnteil. Weitere auffällige Charakteristika der Strecke sind die beiden Anstiege jeweils am Ende des Stadt- und Überlandteils. Wie zuvor erwähnt, wurde dieser ISC-Test nicht nach aktuell gültigen Vorgaben absolviert und weist daher eine zeitliche Aufteilung von 23 % Stadt-, 28 % Überland- und 49 % Autobahnanteil auf. Bei der Anpassung der Runde auf die aktuell gültigen Standards wurde in weiterer Folge der Anstieg am Ende des Überlandteils entfernt. Die dadurch entstandene Strecke verläuft somit hauptsächlich in der Ebene. Der Anstieg am Ende des Stadtteiles wurde beibehalten. Dieser ist essentiell, um auch bei niedrigen Fahrzeugbeladungen Motorleistungen über der vorgegebenen Leistungsgrenze zu erzielen. Abbildung 3-8 zeigt die ISC-Testrunde nach Anpassung an aktuelle Vorgaben. Aufgrund der Änderung in der zeitbasierten Aufteilung hat die neue Strecke nur noch eine Länge von 122 km anstatt der ursprünglichen 143.

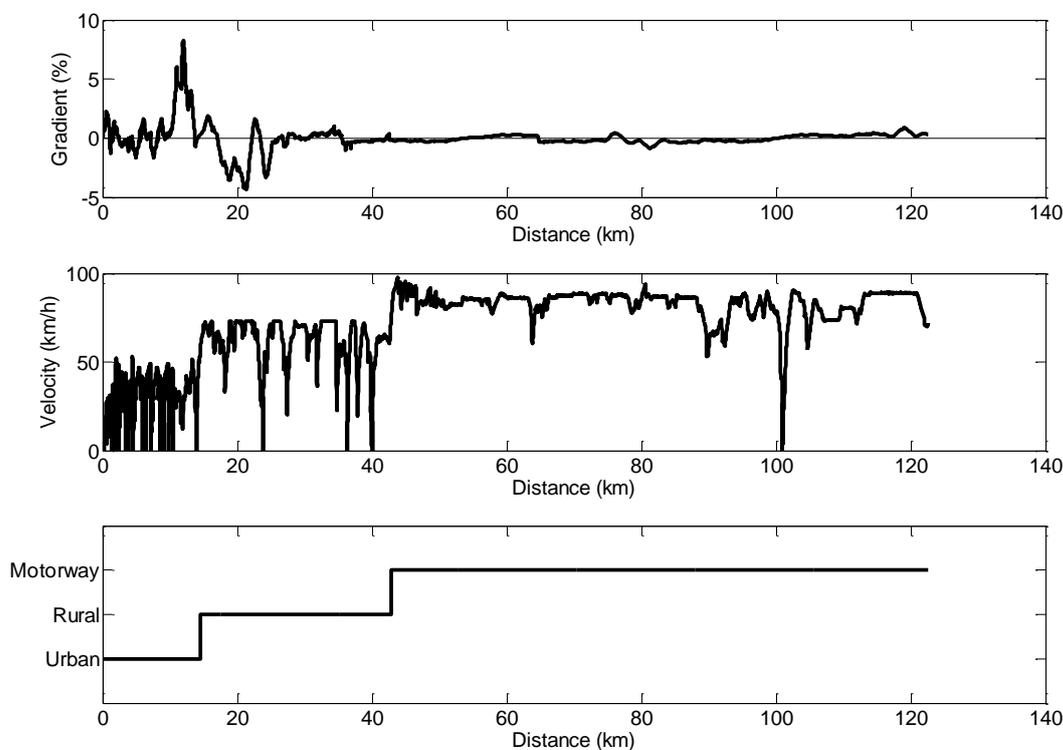


Abbildung 3-8 Angepasste N₃ ISC-Runde nach EURO VI D Standards

Die oberste Grafik in Abbildung 3-8 stellt den Gradienten der neuen Strecke dar. Wie zuvor erwähnt, wurde der Anstieg und das darauffolgende Gefälle am Ende des Überlandteils entfernt. Die mittlere und unterste Grafik zeigen den Geschwindigkeitsverlauf in der Testfahrt, sowie die wegbasierte Aufteilung der unterschiedlichen Regionen.

Mit dieser Strecke als Input wurden anschließend Fahrzeugsimulationen für beide Motorisierungen durchgeführt. Zusätzlich wurde, entsprechend den Angaben in Tabelle 3-1, eine Variation der Fahrzeugbeladung durchgeführt. Mittels der 122 km langen ISC-Runde war es möglich, für Beladungen ≥ 50 % bei 331 kW Nennleistung und für Beladungen von 25, und 50 % bei 220 kW Nennleistung, gültige Ergebnisse zu erzielen. Um eine gültige Runde für eine Fahrzeugbeladung von 10 % bei 220 kW Motorleistung zu erhalten, musste die Strecke auf 203 km verlängert werden. Bei Beladungen von 75 und 100 % führte eine Verkürzung der Strecke auf 110 beziehungsweise 91 km zu gültigen Ergebnissen. Bei allen zuvor genannten Modifikationen wurden die topographischen Eigenschaften der Testrunde nicht verändert, lediglich die einzelnen Regionen entsprechend verkürzt oder verlängert. Aufgrund der Mindestleistungsgrenze war es bei 331 kW Nennleistung nicht möglich, eine gültige Runde für 10 und 25 % Fahrzeugbeladung zu erstellen, ohne das Geländeprofil der Strecke zu verändern. Als problematisch stellt sich bei hoher Motorleistung und geringer Fahrzeugbeladung der Stadtteil heraus. Um im Stadtteil mindestens ein gültiges Fenster zu erhalten, musste daher eine konstante Bergauffahrt eingeführt werden. Für eine Fahrzeugbeladung von 25 % war ein konstanter Gradient von 8 % über eine Strecke von 2 km im Stadtteil nötig. Bei einer Beladung von 10 % musste dieser konstante Gradient über 6 km vorgegeben werden, damit auch im Stadtteil gültige Fenster existieren.

Abbildung 3-9 zeigt einen Überblick über die generierte ISC-Runde für eine Motorleistung von 220 kW und eine Fahrzeugbeladung von 50 %. Die oberste Grafik in der Abbildung stellt die Durchschnittsleistung der einzelnen Arbeitsfenster dar. Wie zu erkennen ist, liegt die Durchschnittsleistung eines jeden Fensters oberhalb der geforderten Leistungsgrenze von 10 % der Maximalleistung. Die Abszisse der oberen beiden Grafiken bildet die Startzeitpunkte eines jeden Arbeitsfensters ab. In der mittleren Grafik ist die Dauer eines jeden Fensters dargestellt, während die unterste Grafik die zeitliche Aufteilung der Strecke in Stadt-, Überland und Autobahnteil abbildet. Die zeitlichen Anteile der einzelnen Regionen liegen innerhalb der erlaubten Toleranzen und es existieren gültige Arbeitsfenster in jeder Region.

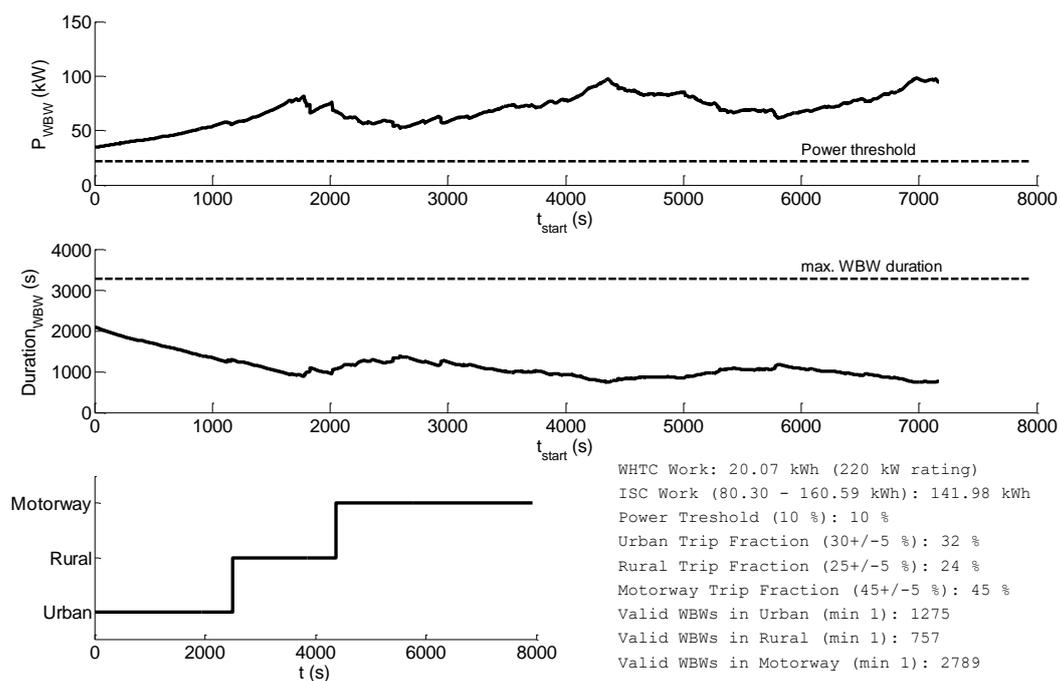


Abbildung 3-9 Gültige ISC Runde für 220 kW Motorleistung und 50 % Fahrzeugbeladung (ohne NO_x-Bewertung)

Tabelle 3-4 bietet eine Zusammenfassung der gültigen ISC-Testrunden für beide Motorisierungen und den Beladungsbereich von 10 – 100 %. Geschwindigkeitsverlauf sowie Streckenprofil aller Runden aus der Tabelle sind im Anhang ab Seite ix grafisch dargestellt.

Gültige ISC-Testrunden (ohne NO _x -Bewertung)		
Fahrzeugbeladung	220 kW	331 kW
10 %	203 km Runde	203 km Runde*
25 %	122 km Runde	203 km Runde**
50 %	122 km Runde	122 km Runde
75 %	110 km Runde	122 km Runde
100 %	91 km Runde	122 km Runde

* 8 % Steigung für 6 km im Stadtteil
 ** 8 % Steigung für 2 km im Stadtteil

Tabelle 3-4 Übersicht: gültige ISC-Testrunden (ohne NO_x-Bewertung)

3.3 Motorsimulation

Die Motorsimulation wurde in einem echtzeitfähigen Matlab Simulink™ Modell durchgeführt. Als Input für die Simulation wurden die zuvor generierten Drehzahl- und Drehmomentspuren verwendet. Für den WHTC wurden diese, wie in Kapitel 2.4.2.1 beschrieben, aus der jeweiligen Volllastkurve des Motors bestimmt. Die Input-Spuren für die ISC-Runden stammen aus den VECTO Simulationen. Als Rahmenbedingungen für die Motorsimulation wurde eine Temperatur von 25 °C, ein Umgebungsdruck von 1 bar und eine Luftfeuchtigkeit von 10 g/kg gewählt. Der verwendete Kraftstoff im Modell hat ein H/C-Verhältnis von 1.75 und ein $\lambda_{\text{stöch}}$ von 14.3. Der simulierte Motor weist ein NO_x-Emissionsniveau von rund 5 g/kWh auf.

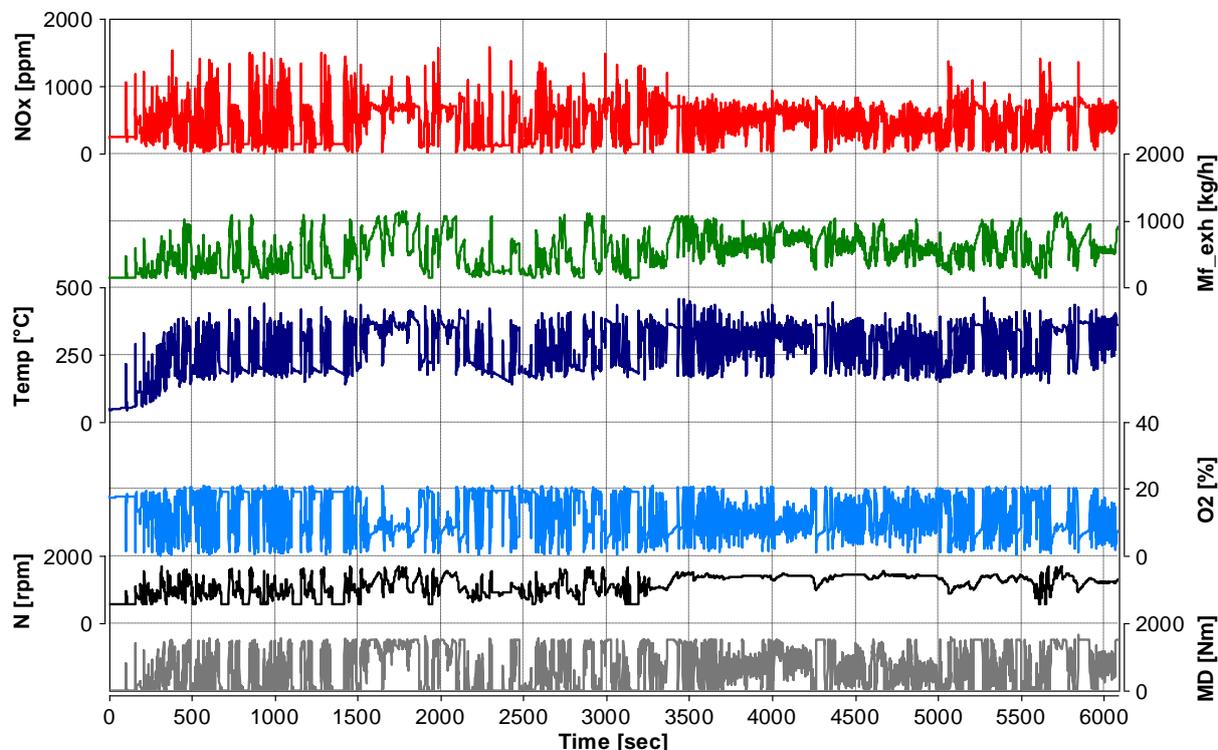


Abbildung 3-10 ISC Ergebnisdaten der Motorsimulation (220 kW, 100 % Fahrzeugbeladung)

Der Output des Motormodells liefert die Abgastemperatur, den Abgasmassenstrom sowie die Zusammensetzung des Abgases. Diese Daten werden für die anschließende Simulation des Abgasmachbehandlungssystems benötigt. Abbildung 3-10 zeigt beispielhafte Ergebnisdaten aus der Motorsimulation. Die Abbildung beinhaltet die NO_x-Konzentration im Abgas, Abgasmassenstrom und -temperatur sowie die Sauerstoffkonzentration, Motordrehzahl und -last.

Aus den Ergebnissen der ISC-Runden wurde die Dauer bis zum Erreichen einer Kühlwassertemperatur von 70 °C ermittelt. Zur Simulation der Abgasnachbehandlung wurden die zuvor definierten ISC-Runden um diese Phasen erweitert. Dadurch wird gewährleistet, dass sich die Systemtemperaturen und NH₃-Beladungen bis zum Beginn der Emissionsbewertung (siehe Kapitel 2.4.3) richtig einstellen. In Tabelle 3-5 sind die Längen dieser Aufheizintervalle für alle untersuchten Fahrzeugbeladungen und Motorleistungen zusammengefasst.

Fahrzeugbeladung	220 kW		331 kW	
	Zeit bis 30 °C	Zeit bis 30 °C	Zeit bis 70 °C	Zeit bis 70 °C
%	s	s	s	s
10	74	73	592	591
25	167	70	648	530
50	163	164	609	604
75	163	163	586	575
100	162	163	492	498

Tabelle 3-5 Aufheizzeiten des Motorkühlwassers für verschiedene Fahrzeugbeladungen und Motorleistungen

Die großen Unterschiede bis zum Erreichen der 30 °C im Kühlwasser liegen daran, dass die Runden zu Beginn unterschiedlich lange Leerlaufphasen aufweisen. Das Fahrzeug fährt in den ISC-Runden (220 kW und 331 kW) mit einer Fahrzeugbeladung von 10 % und einer Beladung von 25 % für die Nennleistung von 331 kW sofort an. In den anderen Testrunden steht das Fahrzeug zu Beginn für rund 100 s still. Beim Aufwärmen auf eine Kühlwassertemperatur von 70 °C zeichnet sich ein klarer Trend ab: mit steigender Fahrzeugbeladung werden die 70 °C schneller erreicht.

3.4 Simulation des Abgasnachbehandlungssystems

Die Simulation der unterschiedlichen Abgasnachbehandlungssysteme wurde, wie auch die Motorsimulation, in Matlab Simulink™ durchgeführt. Im Folgenden Kapitel wird auf die verwendeten Modelle und die einzelnen Systeme genauer eingegangen.

3.4.1 Das Modell – Komponenten und Funktionen

Im Abgasnachbehandlungsmodell werden sowohl chemische Reaktionen als auch physikalische Vorgänge wie Wärmeleitung und -verluste in den Katalysatoren und den Rohrleitungen abgebildet. Die chemischen Reaktionen und das physikalische Verhalten des Modells wurden basierend auf Prüfstandsdaten von AVL parametrisiert und für die Diplomarbeit zur Verfügung gestellt. In einem Black-Box-Modell sind die Kinetiken der auf den Katalysatoren ablaufenden Reaktionen definiert. Im Zuge der Arbeit wurden unterschiedliche SCR-Technologien untersucht. Dabei handelt es sich um eine Kinetik zum NO_x-Umsatz auf einem vanadiumbasierten Katalysator und zwei NO_x-Reduktionskinetiken welche auf Kupfer-Katalysatoren basieren (folglich als Cu-1 und Cu-2 bezeichnet). Cu-1 dient als Basis, um Referenzergebnisse zu generieren. Die Parametrisierung von Cu-2 basiert auf einem moderneren SCR-Katalysator und bietet daher Optimierungspotential bezüglich der Systemperformance. Die Performance aller zur Simulation verwendeten SCR-Technologien basiert auf Ofen-gealterten Substraten. Die verwendeten Kupfer-SCR-Substrate sowie der ASC haben 600 CPSI und eine Wandstärke von 3 mil. Für den vanadiumbasierten SCR-Katalysator wurden 300 CPSI und 5 mil Wandstärke eingestellt. Performance-Plots können im Anhang ab Seite xii eingesehen werden. NO_x-Umsatzraten der eingesetzten Reaktionskinetiken in Abhängigkeit der Temperatur sind in Abbildung 4-5 bis Abbildung 4-7 dargestellt (Raumgeschwindigkeit = 100000 h⁻¹). Die Logik hinter der Eindosierung des Harnstoffes und das Verhalten der modellierten Sensoren und Aktuatoren wurde unverändert von AVL übernommen.

Wie bereits in Abbildung 3-2 dargestellt, können im Modell unterschiedliche Systemarchitekturen evaluiert werden. Die Komponenten DOC, DPF, SCR und ASC können beliebig angeordnet werden, um die verschiedenen Konzepte abzubilden. Auch die Simulation mehrerer SCR-Stufen ist möglich und wird für AGN3 und AGN4 durchgeführt. Relativ zur Positionierung der unterschiedlichen SCR-Stufen können auch die

Harnstoff-Dosiereinheiten im Modell entsprechend angeordnet werden. Im Laufe der Arbeit wurde durch Einsatz der oben genannten SCR-Technologien und einer Variation der SCR-Substratvolumina versucht, optimale Emissionsergebnisse für jedes System zu erzielen. Um Temperaturverluste im System möglichst gering zu halten, wurden sämtliche Rohrstücke als isoliert abgebildet. Die Rahmenbedingungen der Simulation (Umgebungstemperatur, Starttemperatur des Abgasnachbehandlungssystems, NH₃-Startbeladung der SCR-Katalysatoren) können für jede Rechnung separat gesetzt werden. Alle Simulationen wurden bei einer Umgebungstemperatur von 20 °C durchgeführt. Als Freigabetemperatur für die Harnstoff-Dosierung (Dosing-Release-Temperatur) wurde eine SCR-Substrattemperatur von 180 °C gewählt.

Die NH₃-Startbeladung der Systeme wurde vor deren Untersuchung in Vorkonditionierungsläufen erörtert. Die Vorkonditionierung der Systeme wird vom Gesetzgeber auch in realen Prüfstandtests gestattet. Sie dienen dazu am SCR oder SDPF bereits eine NH₃-Beladung aufzubauen bevor der Testzyklus zur Emissionsbewertung gestartet wird. Üblicherweise wird die Systemvorkonditionierung so lange durchgeführt, bis die NH₃-Beladung in den SCR-Komponenten des Systems ein stabiles Niveau erreicht. In der Simulationsstudie wurden dazu drei aufeinander folgende, warm gestartete WHTCs gerechnet. Auf die Ergebnisse dieser Rechnungen wird in den folgenden Kapiteln eingegangen.

3.4.2 Die Konzeptsysteme

In Tabelle 3-6 sind die Substratvolumina aller untersuchten Systeme zusammengefasst. Diese Werte wurden als Ausgangspunkt für die spätere Simulationsstudie gewählt. Auf die einzelnen Systeme wird nachfolgend eingegangen.

	1. SCR	1. ASC	DOC	DPF	SCR	ASC
	Liter	Liter	Liter	Liter	Liter	Liter
AGN1	-	-	8.7	15.2	26	4.4
AGN2	-	-	8.7	21.8	13.1	4.4
AGN3	8.7	2.2	8.7	15.2	17.4	4.4
AGN4	8.7	2.2	8.7	15.2	17.4	4.4

Tabelle 3-6 Katalysator-Basisvolumina der Konzeptsysteme

Bei AGN1 handelt es sich um ein Abgasnachbehandlungssystem, welches derzeit typisch für EURO VI Nutzfahrzeugapplikationen ist. Der Aufbau des Systems entspricht jenem Standardaufbau, welcher auch in Kapitel 2.3 beschrieben wird. Das System hat eine SCR-Stufe. Bevor am SCR-Katalysator ein Temperaturanstieg festgestellt werden kann, muss erst die davor angeordnete thermische Masse aufgeheizt werden. Abbildung 3-11 zeigt den schematischen Aufbau des Abgasnachbehandlungssystems.

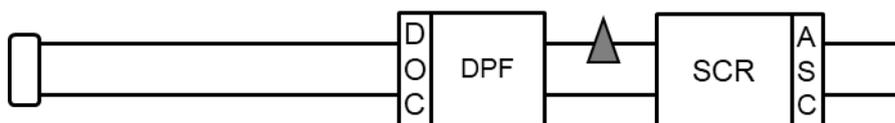


Abbildung 3-11 AGN1

AGN2 ist dem Referenzsystem AGN1 ähnlich. Der DPF wird in diesem System durch einen SDPF ersetzt. Dadurch ergibt sich insgesamt ein größeres SCR-Volumen als beim Referenzsystem. Da der DPF über eine SCR-fähige Beschichtung verfügt, werden die Temperaturen zur NO_x -Konvertierung und Dosierfreigabe früher erreicht. Abbildung 3-12 zeigt das Abgasnachbehandlungssystem schematisch.

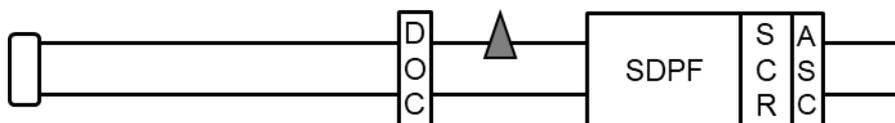


Abbildung 3-12 AGN2

Bei AGN3 handelt es sich um ein System mit zwei SCR-Stufen. Durch die motornahe Platzierung trifft die Enthalpie des Abgasstroms direkt auf den ersten SCR-Katalysator ohne davor eine thermische Masse umgehen zu müssen. Dadurch wird das Dosieren von Harnstoff über den ersten Injektor früh ermöglicht, was zu einer maßgeblichen Reduktion der NO_x -Emissionen in Kaltstartphasen führt. Aufgrund dieser Tatsache werden von AGN3 die besten NO_x -Umsatzraten im Zyklus erwartet. In Abbildung 3-13 ist das System schematisch dargestellt.

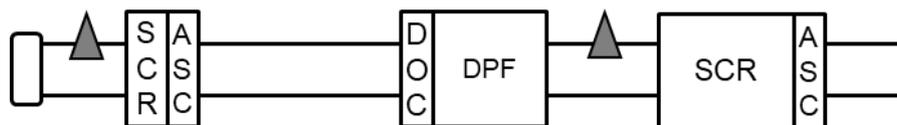


Abbildung 3-13 AGN3

AGN4 hat gleich wie AGN3 zwei SCR-Stufen. Die erste Stufe befindet sich bei AGN4 unmittelbar vor dem DOC. Durch das Verschieben der ersten SCR-Stufe vor den DOC verschlechtert sich das Aufheizverhalten des Systems verglichen mit AGN3. In Abbildung 3-14 ist der Aufbau des Systems dargestellt.



Abbildung 3-14 AGN4

In Tabelle 3-7 sind die Resultate der Vorkonditionierungsläufe zusammengefasst. Die Werte in dieser Tabelle sind als Relativwerte bezogen auf die maximale NH₃-Speicherkapazität des jeweiligen SCR-Katalysators zu verstehen. WHTC und ISC Simulationen wurden unter Verwendung dieser Startbeladungen durchgeführt.

		1. SCR	SDPF	SCR
AGN1	220 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	-	-	0.08
	331 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	-	-	0.12
AGN2	220 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	-	0.14	0.05
	331 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	-	0.28	0.16
AGN3	220 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	0.05	-	0.14
	331 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	0.05	-	0.16
AGN4	220 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	0.05	-	0.14
	331 kW NH ₃ -Startbeladung ^a	0.05	-	0.17

^a nach 3 WHTCs

Tabelle 3-7 WHTC NH₃-Startbeladung der verschiedenen Systeme

3.4.3 Simulationsmatrix WHTC

Wie bereits in den vorhergehenden Kapiteln erwähnt, wurden sowohl das Volumen der SCR Katalysatoren, als auch deren Reaktionskinetiken in der Simulationsstudie variiert. Es wurde der Ansatz verfolgt, die Systeme im WHTC zu optimieren und folglich mit einigen ausgewählten Varianten, welche die beste Performance im WHTC aufweisen, die ISC-Runden zu rechnen.

Da die Basisergebnisse im WHTC bei 220 kW Motorleistung deutlich über den Grenzwerten liegen, wurde zusätzlich motorseitig ein Heizmodus appliziert. Dieser wurde in Form einer Erhöhung der Abgastemperatur auf die Input-Spuren aufgeprägt. Die Temperaturerhöhung basiert auf WHTC-Messdaten, welche von AVL für unterschiedliche Motoren aufgezeichnet wurden. Es wurde eine aggressive Heizmethode mit drastischer Temperaturerhöhung (TM2 (thermal Management)) und eine weniger aggressive mit moderater Erhöhung der Abgastemperatur (TM1) untersucht. In Abbildung 3-15 ist die Temperaturerhöhung des Abgases für die verwendeten Heizmodi dargestellt. Die Heizmodi wurden bei beiden Leistungsvarianten in den ersten 900 s der kalten und der warmen WHTC Phase appliziert. Die ersten 900 s im WHTC beinhalten ein Fahrprofil, welches typisch für innerstädtischen Verkehrsbetrieb ist.¹² Diese Zeitspanne ist daher für das Aufheizen des Abgasnachbehandlungssystems als kritisch zu betrachten.

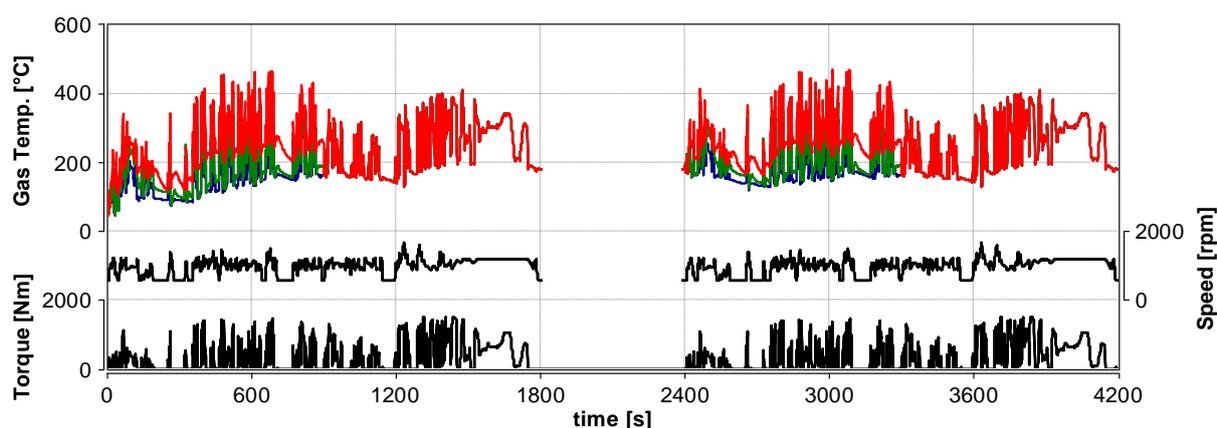


Abbildung 3-15 Gastemperaturerhöhung durch Heizmaßnahmen; 220 kW WHTC (blau: Basis, grün: TM1; rot: TM2)

In Tabelle 3-8 sind die Mitteltemperaturen der kalten und warmen WHTC-Phase für die 220 und 331 kW Motorvariante und die unterschiedlichen Heizmaßnahmen zusammengefasst.

	220 kW WHTC		331 kW WHTC	
	ØTemp. kalt (°C)	ØTemp. warm (°C)	ØTemp. kalt (°C)	ØTemp. warm (°C)
Base	202	216	234	247
TM1	214	225	246	259
TM2	240	254	272	285

Tabelle 3-8 Übersicht WHTC Durchschnittstemperaturen nach Temperaturerhöhung

Tabelle 3-9 zeigt einen Überblick über die Simulationsmatrix, welche für jedes untersuchte System im WHTC angewandt wurde. Darin zusammengefasst sind die zuvor aufgelisteten Schlüsselparameter wie SCR-Volumen, Reaktionskinetik und Abgastemperatur.

AGN Simulationsmatrix (WHTC)			
SCR Gesamtlänge	minus 2 Inch Länge	Basislänge	plus 2 Inch Länge
Verteilung des SCR-Volumens ^a	Änderung der Volumenverteilung in 5 Schritten		
Reaktionskinetik 1. SCR Stufe	Cu-1	Cu-2	V
Reaktionskinetik Haupt-SCR	Cu-1	Cu-2	
WHTC Heizmodus	kein Heizmodus	TM1	TM2

^a bei Systemen mit 2 SCR-Komponenten

Tabelle 3-9 Übersicht WHTC Simulationsmatrix pro untersuchtem System

3.5 Auswertungsmethode

Nachfolgend wird kurz auf die angewandten Auswertungsmethoden zur Bewertung der Systeme eingegangen. Dabei wird für WHTC und ISC-Tests, wie in Kapitel 2.4.2 und 2.4.3.2 beschrieben, vorgegangen.

3.5.1 WHTC

Wie schon in Kapitel 2.4.2 erwähnt, besteht ein WHTC aus 2 identischen Phasen, welche getrennt ausgewertet werden. Zu Beginn der ersten Phase wird der Motor kalt gestartet. Zwischen erster und zweiter Phase folgt die 10-minütige Soak-Time, in welcher der Motor abgestellt wird. Das System wird in der zweiten Phase warm gestartet. Die gewichtete Addition der Emissionen beider Phasen führt zum Zyklus-Gesamtergebnis. In beiden Phasen werden NO_x -Emissionen berechnet. Diese werden leistungsspezifisch in g/kWh ausgewiesen (siehe auch zulässige Grenzwerte in Kapitel 2.4.1). Aus der NO_x -Konzentration in ppm und dem Abgasmassenstrom (mf_{AG}) in kg/h , wird über folgende Gleichungen die emittierte NO_x -Masse berechnet:

$$NO_x \left(\frac{g}{h} \right) = \frac{mf_{AG} * MM_{NO_x} * ppm_{NO_x}}{MM_{AG} * 1000} \quad \text{Gleichung 3-1}$$

MM_{NO_x} und MM_{AG} stehen in Gleichung 3-1 für die molare Masse von NO_x und die molare Masse des Abgases. Die NO_x -Konzentration in ppm ist als molare Größe zu verstehen. Die molare Masse von Abgas wird als 29 g/mol angenommen, die molare Masse von NO_x als 46.01 g/mol . Nach Einsetzen in Gleichung 3-1 ergibt sich folgender Zusammenhang zur Berechnung des NO_x -Massenstroms.¹⁹

$$NO_x \left(\frac{g}{h} \right) = mf_{AG} * ppm_{NO_x} * 0.001587 \quad \text{Gleichung 3-2}$$

Der Faktor 0.001587 gilt als gesetzlicher Faktor zur Berechnung von NO_x -Emissionen.¹⁹ Der stündliche NO_x -Massenstrom aus Gleichung 3-2 wird über die Dauer der WHTC-Phasen integriert, wodurch sich die emittierte NO_x -Masse ergibt.

¹⁹ (Europäische Union, 1997)

Die verrichtete Arbeit wird durch Integration der Motorleistung bestimmt. Der Leistungsverlauf im Zyklus wird anhand von Gleichung 3-3 berechnet. Darin bezeichnet N die Motordrehzahl in rpm und MD das Drehmoment in Nm.

$$PWR (kW) = \frac{N * MD * 2 * \pi}{60 * 1000} \quad \text{Gleichung 3-3}$$

Nach Division der emittierten NO_x -Masse in g durch die geleistete Arbeit in kWh, ergeben sich leistungsspezifische NO_x -Emissionen in g/kWh. Diese werden auch als „brake-specific- NO_x “ ($BSNO_x$) bezeichnet.

Die Emissionen der kalten und der warmen WHTC-Phase werden addiert, um die WHTC-Gesamtemissionen zu erhalten. Das Ergebnis der kalten Phase wird mit 1/7 und das der warmen mit 6/7 gewichtet (Gleichung 3-4).

$$BSNO_{x_{total}} = BSNO_{x_{cold}} * \frac{1}{7} + BSNO_{x_{warm}} * \frac{6}{7} \quad \text{Gleichung 3-4}$$

Zur Auswertung der Simulationsergebnisse wurde eine Matlab-Routine eingesetzt, welche charakteristische Daten (zB. $BSNO_x$, NH_3 -Schlupf, N_2O -Emissionen, NO_2 -Bildung am DOC etc.) zusammenfasst.

3.5.2 ISC-Tests

Im Gegensatz zum WHTC werden die NO_x -Emissionen im ISC-Test nicht über den gesamten Test, sondern über sich bewegende Fenster nach der Methode des gleitenden Durchschnitts, ermittelt. Dies wird in Kapitel 2.4.3.2 genauer ausgeführt. Die Berechnung der leistungsspezifischen NO_x -Emissionen pro Fenster erfolgt wie in Gleichung 3-2 bis Gleichung 3-4 beschrieben. Die NO_x -Emissionen pro Fenster werden ins Verhältnis zum gesetzlichen Limit (0.46 g/kWh) gesetzt und somit der Conformity-Faktor (CF; Gleichung 2-25) berechnet.

Die Emissionen im ISC-Test entsprechen je nach angewandter Gesetzgebung den höchsten CF Werten in der Messung, wobei für EURO VI C und D die höchsten 10 % der Werte gestrichen werden können. Lediglich bei der Bewertung der Kaltstartphase für EURO VI E konforme ISC-Tests kommen alle CF-Werte von gültigen Fenstern im Testergebnis zu tragen.

Gleich wie zur Auswertung der WHTC-Simulationsergebnisse, wurde auch für die ISC-Rechnungen eine Matlab Routine verwendet. In dieser Routine können die ISC-Rahmenbedingungen beliebig gesetzt werden, um alle gesetzlichen Szenarien abzudecken. In der Routine werden die ISC-Tests basierend auf der WHTC-Arbeit bewertet. Dazu werden, wie vom Gesetzgeber gefordert, die arbeitsbasierenden Fenster gebildet und Emissionen in diesen bestimmt. Gleichzeitig wird auch die Gültigkeit eines jeden Fensters überprüft (max. Länge, Durchschnittsleistung etc.). Die Matlab Routine wurde mit der offiziellen PEMS-Auswertungssoftware von AVL abgeglichen. Dabei hat sich gezeigt, dass die Ergebnisse in einem Bereich von $\pm 15\%$ an jenen aus der AVL-Software liegen. Aufgrund der besseren Handhabung wurde zur Auswertung der ISC Ergebnisse ausschließlich das Matlab-Tool verwendet.

4 Ergebnisauswertung

In diesem Kapitel werden die Simulationsergebnisse der unterschiedlichen Systeme zusammengefasst und verglichen. Es wird zunächst auf die Systemoptimierung durch die Variation von Schlüsselparametern wie Abgas-Temperatur, SCR-Volumen und -Kinetik im WHTC eingegangen. Die Systemkonfigurationen, welche im WHTC in der Lage waren, die besten Resultate zu erzielen, wurden anschließend auch in ISC-Tests untersucht.

4.1 Bewertung der Systemperformance im WHTC

4.1.1 Einfluss der variierten Parameter im WHTC

4.1.1.1 Temperatur

Wie bereits in Kapitel 3.4.3 erwähnt, wurde in den Simulationen die Temperatur des Abgases im WHTC von der Basisspur ausgehend in zwei Stufen erhöht. Die erhöhten Temperaturniveaus basieren auf bei AVL gemessenen Daten. In Abbildung 4-1 ist der Einfluss der Temperaturvariation auf die Systemperformance dargestellt. Die Simulationsdaten stammen aus dem WHTC der 220 kW Motorvariante für AGN1. Im Diagramm sind SCR Temperatur, tailpipe (TP) NO_x für die kalte und warme WHTC-Phase und der Harnstoff-Massenstrom dargestellt.

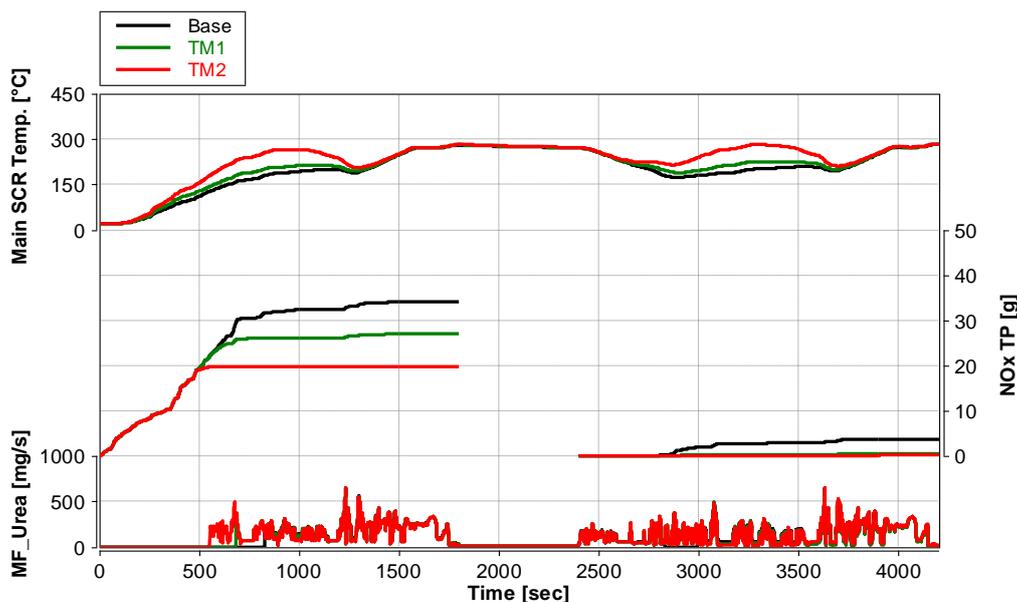


Abbildung 4-1 Einfluss der Gastemperatur auf die Systemperformance (AGN1, 220 kW, 21.7 l SCR, Kinetik: Cu-1)

In der kalten und warmen Phase zeigt sich durch die Temperaturanhebung eine Reduktion der NO_x-TP-Emissionen. Ein höheres Temperaturniveau ermöglicht einen früheren Beginn der Harnstoff-Dosierung und einen höheren SCR-Wirkungsgrad (siehe Anhang Seite xii). Die Performancesteigerung zwischen TM1 und TM2 ist in der kalten WHTC-Phase deutlich ausgeprägter erkennbar als in der warmen. Tabelle 4-1 zeigt die gewichteten WHTC-Gesamtemissionen. Durch die Abgastemperaturerhöhung können die TP-Emissionen bei gleichbleibendem Emissionsniveau des Motors relativ zur Basis mehr als halbiert werden.

WHTC	BSNO _x TP
	g/kWh
Basis	0.4
TM1	0.22
TM2	0.15

Tabelle 4-1 BSNO_x-TP AGN1 (220 kW, 21.7 l SCR, Kinetik: Cu-1)

4.1.1.2 SCR-Volumen

Neben der Abgastemperatur wurde auch das SCR-Volumen für alle Systeme variiert. Nachfolgend wird der Einfluss der Volumenvariation anhand von Ergebnissen von AGN1 und der 220 kW Motorvariante erläutert. In Abbildung 4-2 sind WHTC-Ergebnisse für drei verschiedene SCR-Volumina dargestellt.

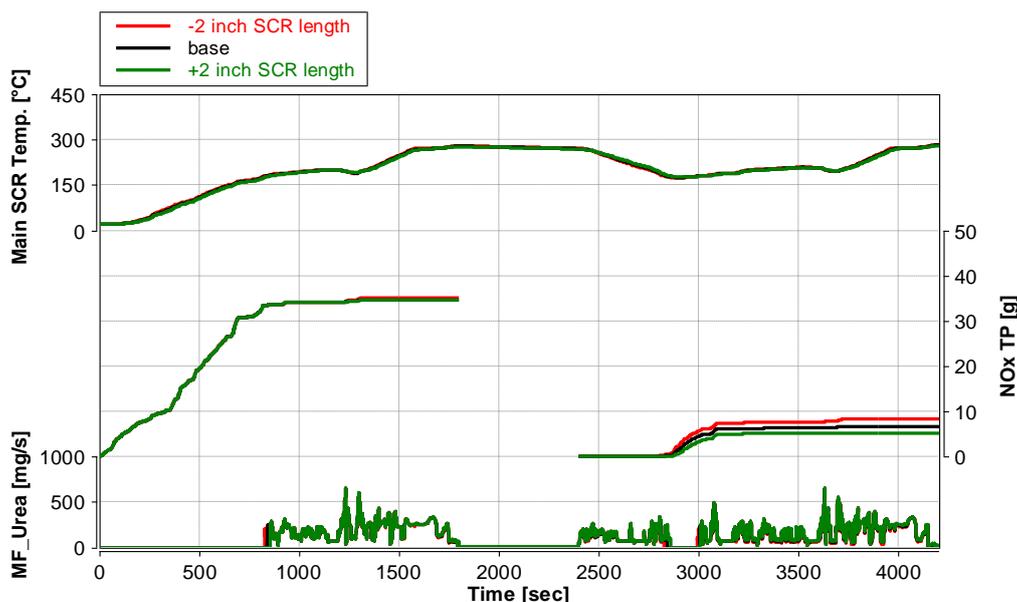


Abbildung 4-2 Einfluss des SCR-Volumens auf die Systemperformance (AGN1, 220kW, Kinetik: Cu-2, kein Heizmodus)

Die Veränderung des SCR-Volumens nimmt Einfluss auf zwei essentielle Parameter: die thermische Masse des Systems und die erreichte Raumgeschwindigkeit im SCR-Katalysator. In Abbildung 4-2 ist ersichtlich, dass sich die NO_x -Emissionen in der kalten WHTC-Phase mit dem SCR-Volumen kaum verändern. An der Harnstoff-Spur ist zu erkennen, dass die Dosierfreigabe schneller erreicht wird, je kleiner das SCR-Volumen ist. In der warmen WHTC-Phase hingegen zeigen die Systeme mit größerem SCR-Volumen aufgrund der reduzierten SV höhere Umsatzraten. Da die warme Phase stärker gewichtet wird als die kalte, hat die Reduktion der Raumgeschwindigkeit insgesamt einen gravierenderen Einfluss auf das WHTC-Resultat. Kombinierte NO_x -Emissionswerte aus der vorhergehenden Abbildung sind in Tabelle 4-2 zusammengefasst. Alle Ergebnisse für das gezeigte System liegen über dem EURO VI Grenzwert von 0.46 g/kWh.

BSNO _x TP	
WHTC	g/kWh
-2 Inch	0.60
Basis	0.53
+2 Inch	0.47

Tabelle 4-2 BSNO_x-TP AGN1 (220 kW, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-2)

Zusätzlich zur Variation des SCR-Gesamtvolumens wurde bei Systemen mit mehreren SCR-Komponenten (AGN2, AGN3 & AGN4) auch die Verteilung des Volumens auf diese Komponenten jeweils in fünf Schritten variiert. Anhand von AGN3 wird in Abbildung 4-3 (220 kW Motorisierung) der Einfluss der Volumenverteilung erläutert. Die Systemvariante mit dem größten Volumenanteil in der ersten SCR-Komponente erreicht die niedrigsten NO_x -Emissionen in der kalten WHTC-Phase. Dies ist dadurch bedingt, dass sich die erste SCR-Komponente deutlich schneller erwärmt als der Haupt-SCR. Dadurch führt ein größeres Volumen der ersten Stufe zu höheren Konvertierungsraten. Aufgrund des höheren NO_2/NO_x -Verhältnisses vor dem Haupt-SCR und der dadurch verstärkt ablaufenden „Fast SCR“ Reaktion (Gleichung 2-10) weist dieser insgesamt jedoch eine höhere Effizienz auf. Es zeigt sich daher in der warmen WHTC-Phase ein höherer Wirkungsgrad für die Variationen mit dem größtmöglichen Haupt-SCR. Der Performance-Unterschied in der warmen WHTC-Phase ist deutlich größer als jener in der kalten, weshalb insgesamt die Systeme mit größtmöglichem Haupt-

SCR niedrigere NO_x -Emissionen aufweisen. Des Weiteren geht aus den Simulationsergebnissen hervor, dass der erste SCR-Katalysator mindestens eine Länge von 4 Inch (Volumen = 8.7 l) aufweisen muss. Bei Volumina < 8.7 l hat sich gezeigt, dass während heißen Perioden im WHTC NH_3 aus der ersten SCR-Stufe austritt. Aus diesem NH_3 -Schlupf wird am DOC N_2O gebildet (Gleichung 2-19). Da auch N_2O -Emissionen von Gesetzgeber in der Zukunft höchstwahrscheinlich limitiert werden, ist aus diesem Grund NH_3 -Schlupf nach der ersten SCR-Stufe zu vermeiden.

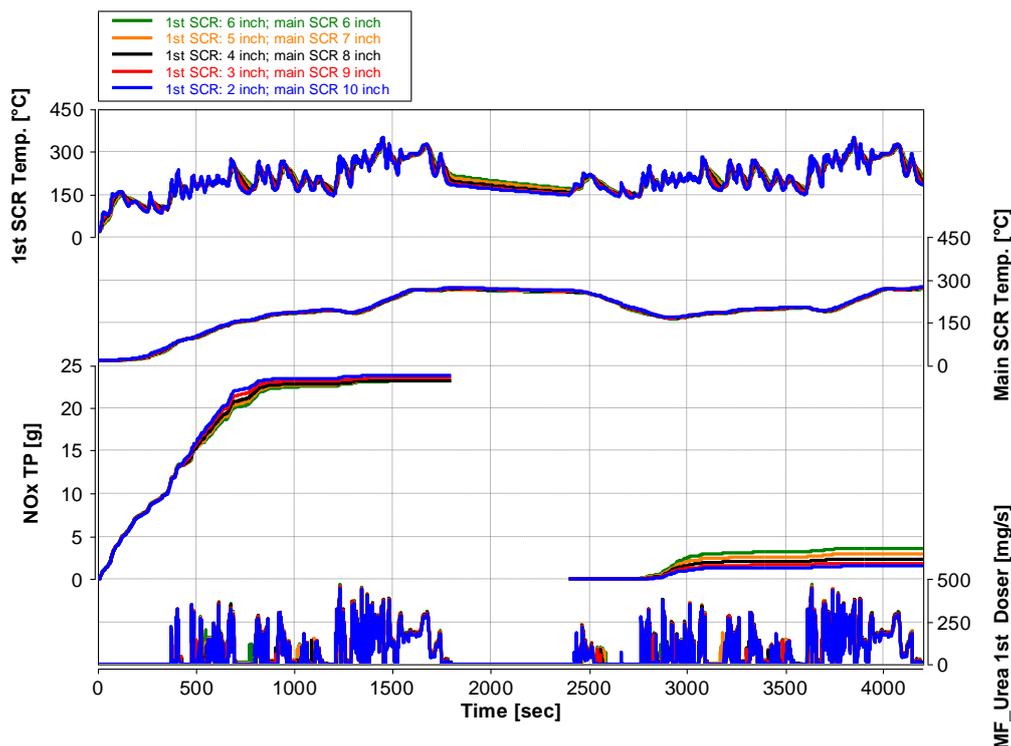


Abbildung 4-3 Einfluss der Verteilung SCR-Volumens auf die Systemperformance (AGN3, 220 kW, 26.1 l SCR-Gesamtvolumen, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-1 (beide SCR-Substrate))

In Tabelle 4-3 sind die WHTC-Gesamtergebnisse für die Daten aus Abbildung 4-3 zusammengefasst. Alle Ergebnisse liegen unterhalb des Grenzwertes von 0.46 g/kWh. Da Systeme mit einer Länge des ersten SCR < 4 Inch ausscheiden, kann die beste Performance bei einer Volumenverteilung von 1/3 auf die erste Komponente und 2/3 auf den Haupt-SCR erreicht werden.

WHTC	BSNO _x nach 1. SCR	BSNO _x TP
	g/kWh	g/kWh
6 Inch 1. SCR, 6 Inch Haupt-SCR	1.64	0.32
5 Inch 1. SCR, 7 Inch Haupt-SCR	1.73	0.29
4 Inch 1. SCR, 8 Inch Haupt-SCR	1.83	0.26
3 Inch 1. SCR, 9 Inch Haupt-SCR	1.96	0.25
2 Inch 1. SCR, 10 Inch Haupt-SCR	2.13	0.23

Tabelle 4-3 BSNO_x nach 1. SCR & TP AGN3 (220 kW, SCR-Gesamtvolumen 26.1 l, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-1 (beide SCR-Substrate))

4.1.1.3 Systemkonfiguration

Nachfolgend wird ein Vergleich der deNO_x-Performance zwischen den vier untersuchten Systemen gezogen. Dazu werden Ergebnisse aller Systeme in ihrer Basiskonfiguration für den 331 kW WHTC ohne thermal Management dargestellt. Abbildung 4-4 zeigt SCR Temperatur, TP NO_x und Harnstoff-Massenströme. Die Harnstoff-Massenströme entsprechen für zweistufige Systeme jenen des zweiten Injektors.

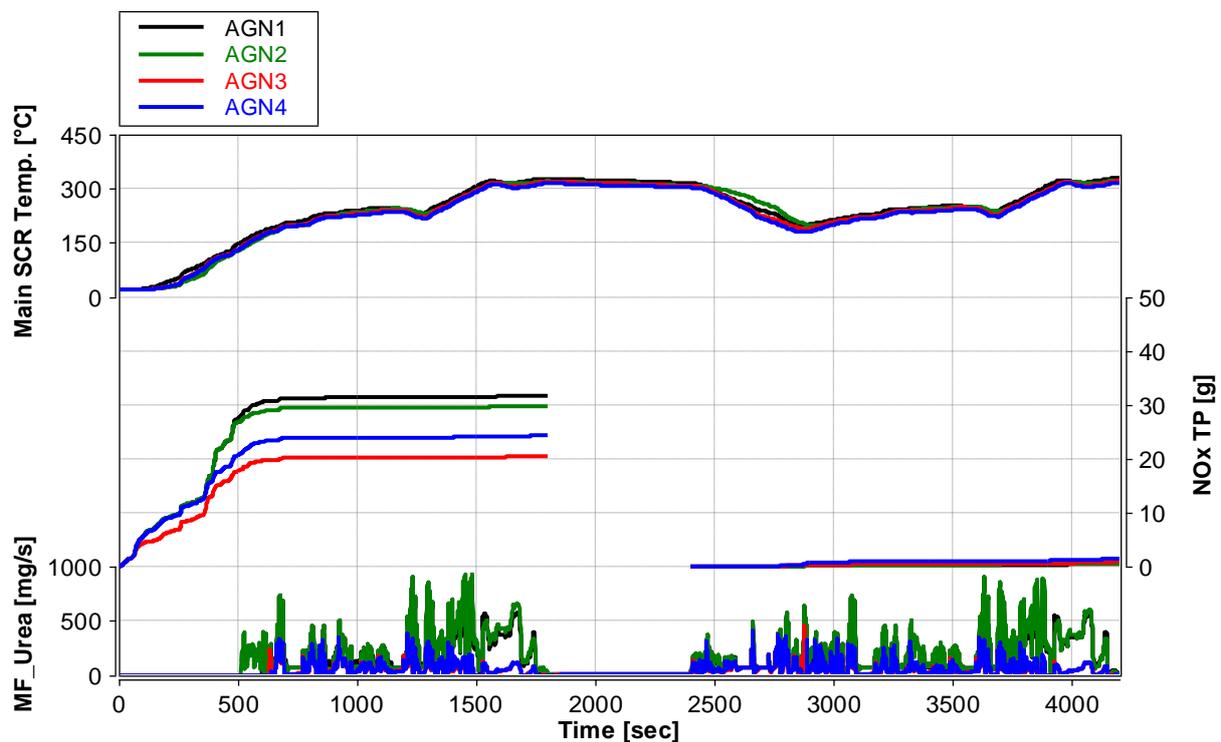


Abbildung 4-4 Vergleich der unterschiedlichen Konzeptlayouts (331 kW, kein Heizmodus, Basissysteme, Kinetik SCR-Substrate: Cu-1)

In der Abbildung ist zu erkennen, dass AGN2 am Beginn der warmen WHTC-Phase aufgrund der größten thermischen Masse am langsamsten auskühlt. AGN3 ist am schnellsten in der Lage NO_x zu reduzieren, wodurch es in der kalten WHTC-Phase die niedrigsten NO_x -Emissionen aufweist. In der warmen WHTC-Phase gibt es nur geringfügige Unterschiede zwischen den verschiedenen Systemen. Aus AGN4 treten 1.4 g NO_x aus, während AGN1 und AGN2 mit etwa 0.6 g NO_x -Schlupf die höchsten Konvertierungsraten in der warmen Phase zeigen. An der Spur der Harnstoff-Massenströme fällt auf, dass diese für AGN1 und AGN2 deutlich höher sind als bei AGN3 und AGN4. Dies liegt daran, dass bei AGN3 und AGN4 die erste SCR-Stufe den NO_x -Gehalt im Abgas bereits reduziert, und daher in der zweiten Stufe geringere Dosiermengen ausreichend sind. Da beim SDPF System (AGN2) die Dosierfreigabe anhand der SDPF-Temperatur geregelt wird, kann bei diesem System bereits rund 150 s früher in der SCR-Hauptstufe dosiert werden als bei den anderen Systemen.

	BSNO _x nach 1. SCR	BSNO _x TP
WHTC	g/kWh	g/kWh
AGN1	5.590	0.165
AGN2	5.590	0.158
AGN3	1.418	0.122
AGN4	1.560	0.154

Tabelle 4-4 BSNO_x TP Vergleich Basissysteme (331 kW, kein Heizmodus, Kinetik SCR-Substrate: Cu-1)

In Tabelle 4-4 sind die WHTC-Zyklusergebnisse für die, in Abbildung 4-4 gezeigten, Systeme zusammengefasst. Alle Resultate liegen unter dem EURO VI Grenzwert, während das niedrigste Resultat mit AGN3 erzielt werden kann.

4.1.1.4 SCR Kinetik

Es wurden im Laufe der Simulationsstudie drei verschiedene SCR-Kinetiken untersucht. NO_x -Konvertierungsraten dieser SCR-Kinetiken in Abhängigkeit der Temperatur und des vorliegenden NO_2/NO_x -Verhältnisses im Abgas sind in Abbildung 4-5 bis Abbildung 4-7 dargestellt. Alle Kinetiken basieren auf Messdaten von gealterten Substraten. Wie bereits in Kapitel 2.3.3.3 aus der Literatur angeführt wurde, treten bei vanadium basierten SCR-Katalysatoren stärkere Leistungseinbußen durch Alterungerscheinungen auf, als bei Katalysatoren auf Kupferbasis. Dieses Verhalten zeichnet

sich auch in der Modellperformance ab. Durch Verwendung von V-Formulierungen kann der N₂O-Bildung vorgebeugt werden, allerdings sind NO_x-Konvertierungsraten niedriger als bei Cu-Formulierungen. Die Performance-Plots der Kinetiken Cu-1 und Cu-2 zeigen, dass Cu-2 im Temperaturbereich von 250-450 °C wesentlich unempfindlicher gegen Veränderungen im NO₂/NO_x-Verhältnis ist als Cu-1. Cu-1 weist hingegen bei Temperaturen < 250 °C und NO₂/NO_x-Verhältnissen ≥ 50 % bessere Umsatzraten auf.

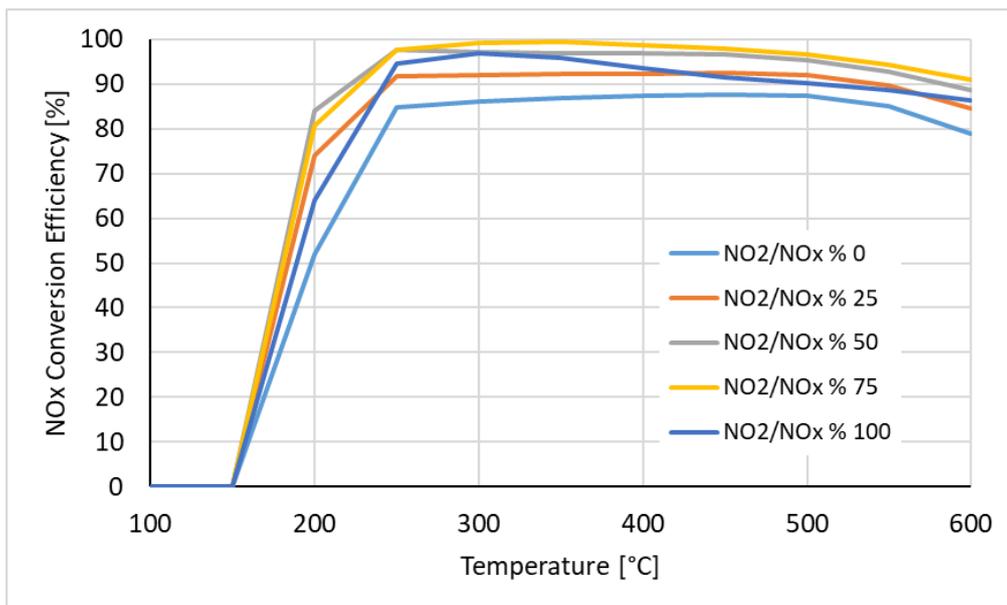


Abbildung 4-5 NO_x-Konvertierung des SCR, Cu-1 (SV = 100k)

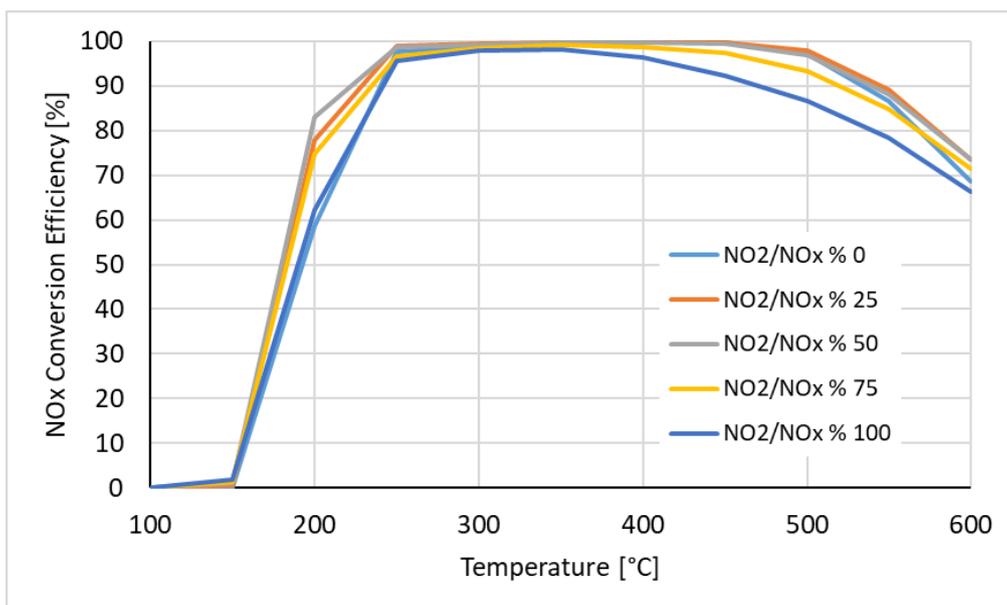


Abbildung 4-6 NO_x-Konvertierung des SCR, Cu-2 (SV = 100k)

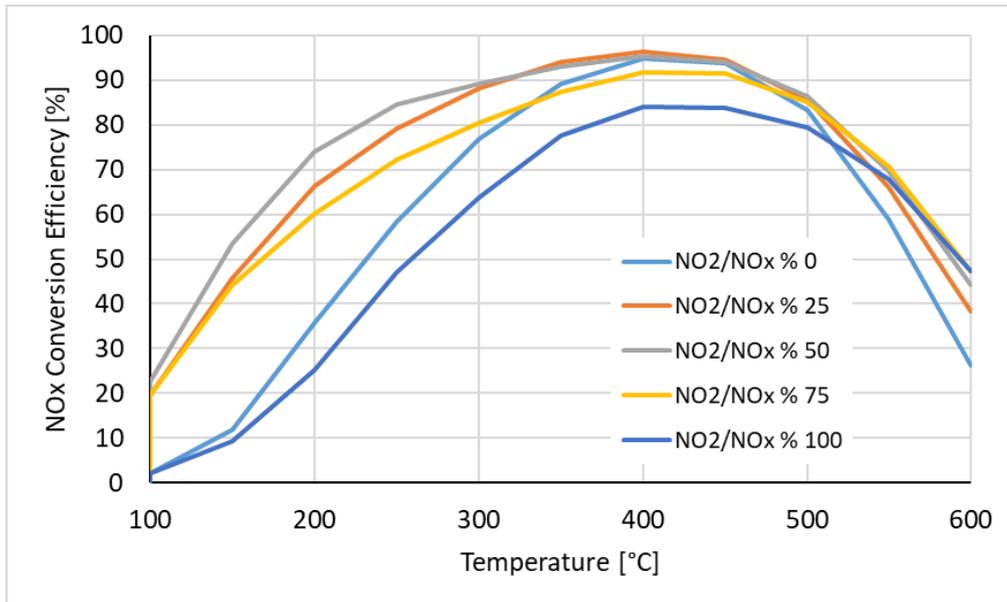


Abbildung 4-7 NO_x-Konvertierung des SCR, V (SV = 100k)

Da sich der erste SCR-Katalysator bei AGN3 und AGN4 schnell erwärmt und NO₂/NO_x-Verhältnisse von lediglich 10 % vor dieser Komponente vorliegen, führt hier der Einsatz der Cu-2 Kinetik zu den besten Resultaten. In Abbildung 4-8 und Abbildung 4-9 sind WHTC-Ergebnisse für AGN3 dargestellt. Es werden darin Resultate für beide Motorvarianten, beide kupferbasierten SCR-Kinetiken und alle angewandten Heizmaßnahmen abgebildet. Das SCR-Gesamtvolumen beläuft sich auf 26.1 l, von denen 8.7 l auf den ersten SCR-Katalysator entfallen.

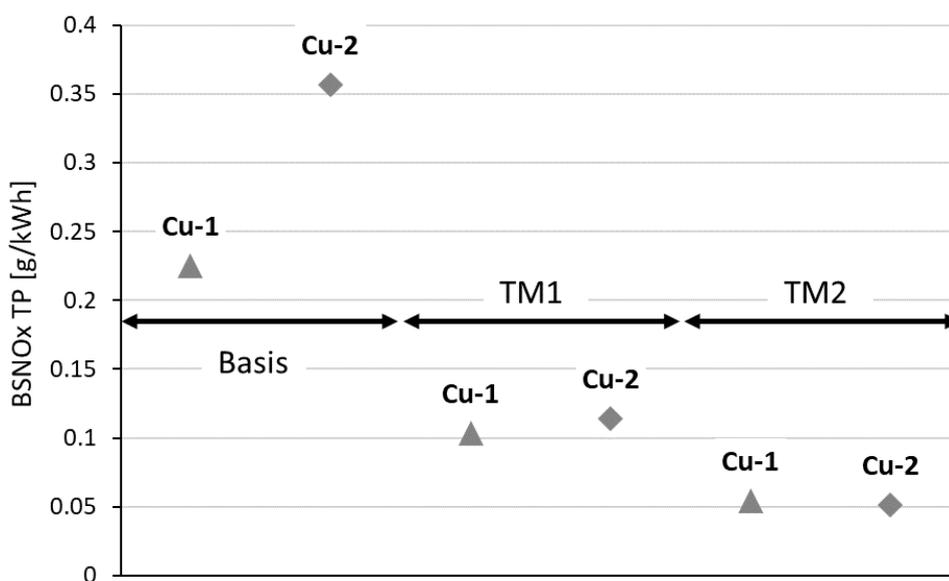


Abbildung 4-8 AGN3, 220 kW, Variation von Haupt-SCR Kinetik und Heizmaßnahmen

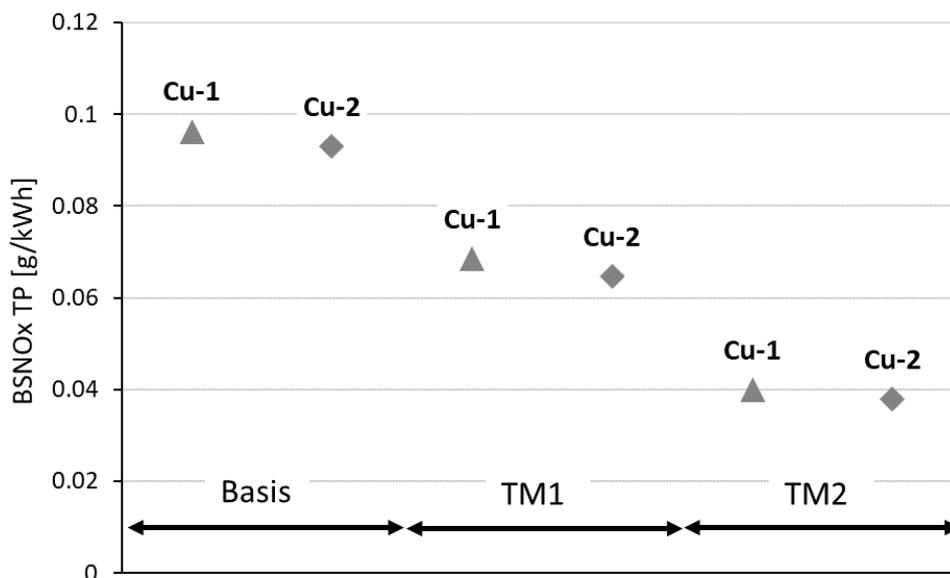


Abbildung 4-9 AGN3, 331 kW, Variation von Haupt-SCR Kinetik und Heizmaßnahmen

Aus Abbildung 4-8 und Abbildung 4-9 geht hervor, dass bei der 220 kW Variante ohne Heizmodus die besten Emissionen durch Einsatz von Cu-1 am Haupt-SCR erreicht werden. Durch das Anwenden von Heizmaßnahmen verringert sich der Unterschied im Ergebnis zwischen Cu-1 und Cu-2. Im 220 kW WHTC kann unter Anwendung von TM2 (\varnothing Temp. WHTC kalt = 240 °C, \varnothing Temp. WHTC warm = 254 °C) mit Cu-2 eine vergleichbare NO_x -Konvertierung erreicht werden wie mit Cu-1. Da das WHTC-Temperaturniveau der 331 kW Motorvariante höher liegt als jenes der 220 kW Variante, liegen die NO_x -Emissionen bei Einsatz von Cu-2 immer unter jenen von Cu-1. Es gilt somit Cu-2 als die effektivere SCR-Kinetik, wenn Durchschnittstemperaturen > 250 °C im Zyklus erreicht werden können.

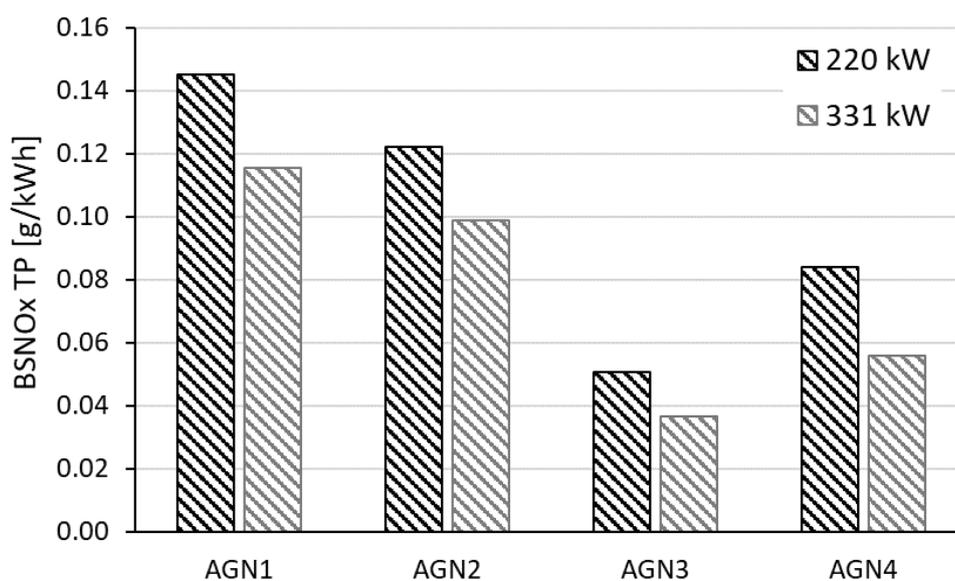
4.1.2 Zusammenfassung der Bestsysteme

Im Zuge der Simulationsstudie haben folgende, in Tabelle 4-5 dargestellte, Systemkonfigurationen zu Bestergebnissen im WHTC geführt. Aufgrund der guten Performance im Mitteltemperaturbereich (250-450 °C) und der geringen Sensitivität gegenüber dem vorliegenden NO_2/NO_x -Verhältnis wurde als Reaktionskinetik für alle SCR-Komponenten Cu-2 gewählt.

	1. SCR Volumen Liter	SDPF Volumen Liter	Haupt-SCR Volumen Liter
AGN1	-	-	30.5
AGN2	-	17.4	17.4
AGN3	8.7	-	21.8
AGN4	8.7	-	21.8

Tabelle 4-5 SCR-Volumina der Bestsysteme

In Abbildung 4-10 sind die WHTC-Gesamtergebnisse der oben angeführten Bestsysteme dargestellt. Alle Resultate wurden unter Anwendung von TM2 erzeugt und liegen daher deutlich unter dem EURO VI Grenzwert von 0.46 g/kWh. AGN3 erzielt im WHTC die niedrigsten NO_x-Emissionswerte. Obwohl das SCR-Gesamtvolumen von AGN1, AGN3 und AGN4 identisch ist, sind die Systeme mit zwei SCR-Stufen in der Lage im Zyklus deutlich höhere NO_x-Konvertierungsraten zu erreichen als das EURO VI Referenzsystem. AGN4 ist in der Lage das NO_x-Emissionsniveau relativ zum Referenzsystem zu halbieren, während sich Emissionen von AGN3 auf etwa ein Drittel derer des Referenzsystems belaufen. Aufgrund des höheren Abgastemperaturniveaus der 331 kW Motorvariante sind NO_x-Emissionen bei dieser im Vergleich zur 220 kW Variante durchgehend niedriger.

Abbildung 4-10 WHTC BSNO_x TP-Resultate der Bestsysteme

4.2 Vergleich der Konzeptlayouts im realen Fahrbetrieb (ISC)

4.2.1 Applikation von Heizmaßnahmen im ISC

Die Systemkonfigurationen aus Kapitel 4.1.2 wurden in den ISC-Tests untersucht (ISC-Runden siehe Anhang Seite ix). Als besonders kritisch unter den ISC-Tests gelten jene Runden, welche mit 10 oder 25 % Fahrzeugbeladung absolviert werden. Aufgrund der niedrigen Motorlast speziell im Stadtteil können die zur Dosierfreigabe benötigten Temperaturen erst spät erreicht werden. In Abbildung 4-11 und Abbildung 4-12 sind Ergebnisse aus den ISC-Tests bei 10 % Fahrzeugbeladung dargestellt. In den Abbildungen werden Haupt-SCR-Temperatur, TP NO_x und der Harnstoffmassenstrom (Injektor vor Haupt-SCR) gezeigt. Sowohl die 220 als auch die 331 kW Motorvariante können im Stadtbetrieb die Dosing-Release-Temperatur von 180 °C am SCR nicht erreichen. Innerhalb der ersten ~4000 s liegen die SCR-Temperaturen bei rund 170 °C. Lediglich AGN3 ist im Stadtbetrieb in der Lage NO_x teilweise zu konvertieren. Ab dem Erreichen der Bergauffahrt am Ende der Stadtregion sind SCR-Temperaturen ausreichend, um eine nahezu vollständige NO_x-Konvertierung zu gewährleisten. Dies bedeutet, dass das, seit EURO VI D geforderte, gültige Fenster im reinen Stadtbetrieb ohne Heizmaßnahmen nicht erreicht werden kann.

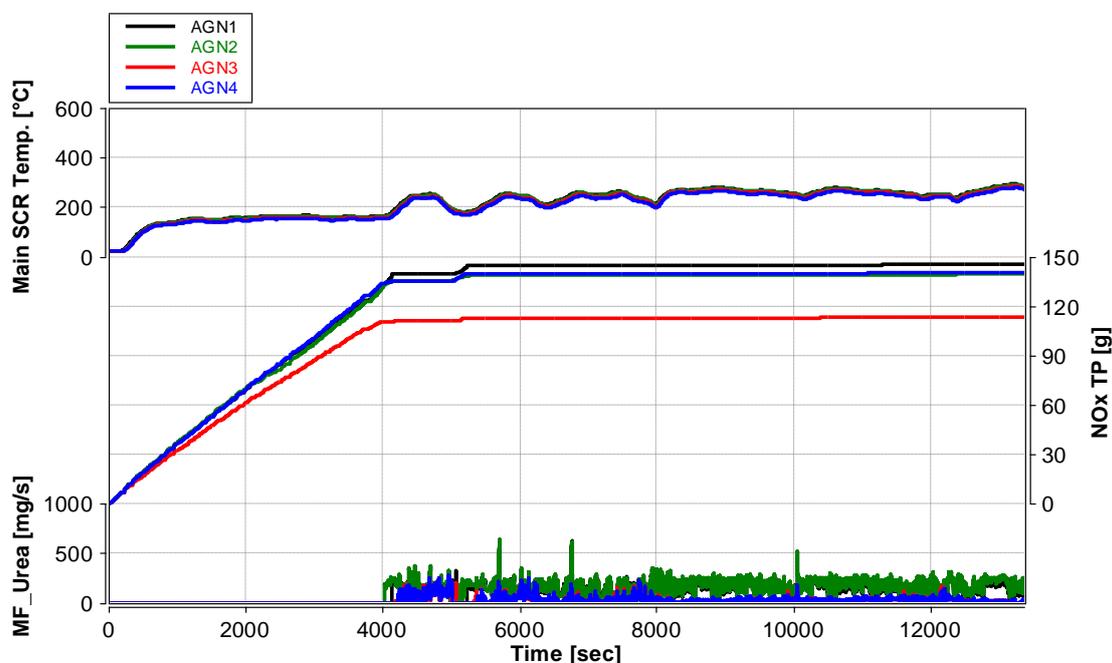


Abbildung 4-11 ISC-Test 220 kW, 10 % Fahrzeugbeladung, Vergleich der Konzeptlayouts

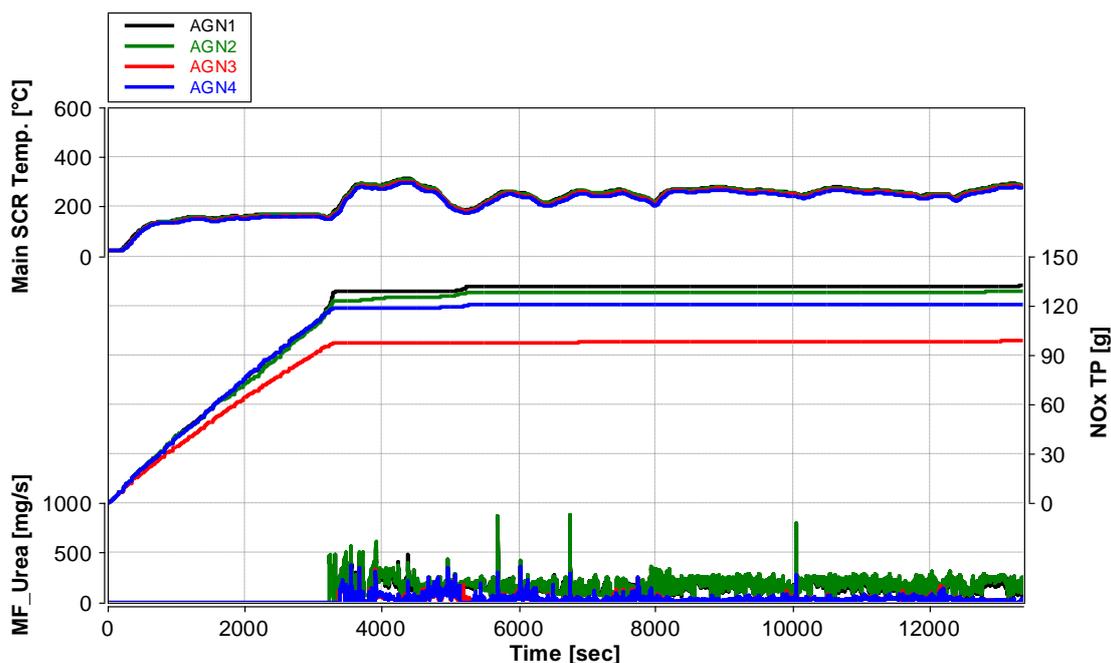


Abbildung 4-12 ISC-Test 331 kW, 10 % Fahrzeugbeladung, Vergleich der Konzeptlayouts

Um zu gewährleisten, dass die NO_x -Emissionen im Stadtteil innerhalb des zulässigen Toleranzbereiches bleiben, müssen in den ISC-Tests in dieser Phase Heizmaßnahmen appliziert werden. Da für die, im Zuge der Arbeit generierten, Testfahrten keine vergleichbaren Messdaten vorliegen, wurde eine Abgastemperaturerhöhung und der damit einhergehende Kraftstoff-Mehrverbrauch drehzahl- und lastabhängig auf die Basisinputs aufgeprägt. Dazu wurden Kennfelder des verwendeten Motormodells im Heizmodus und Fuel-Efficiency-Modus herangezogen. Zwischen Heizmodus und Fuel-Efficiency-Modus wurden Differenzkennfelder errechnet und die Werte aus diesen in Abhängigkeit von Motordrehzahl und -drehmoment auf die Basisspur aufgeprägt. Durch diese Maßnahmen soll die Temperatur des Haupt-SCR im Stadtteil der ISC-Tests zwischen 180 und 250 °C gehalten werden. Jeder Zyklus wird dazu im Heizmodus gestartet. Als Kriterium zum Umschalten zwischen Heizmodus und Fuel-Efficiency-Modus wurde das Erreichen einer SCR-Temperatur von 230 °C gesetzt. Bei Unterschreiten einer SCR-Temperatur von 200 °C wird der Heizmodus erneut solange aktiviert, bis der SCR wieder 230 °C erreicht. Es wurden wie im WHTC zwei Abstufungen dieses Heizmodus (bezeichnet als TM1 & TM2) appliziert. TM2 stellt eine aggressivere Heizmaßnahme dar als TM1. In Abbildung 4-13 ist der Stadtteil aus der 220 kW ISC-Runde bei 10 % Fahrzeugbeladung unter Anwendung der verschiedenen Heizstrategien dargestellt. Die Simulationen wurden mit AGN1 durchgeführt.

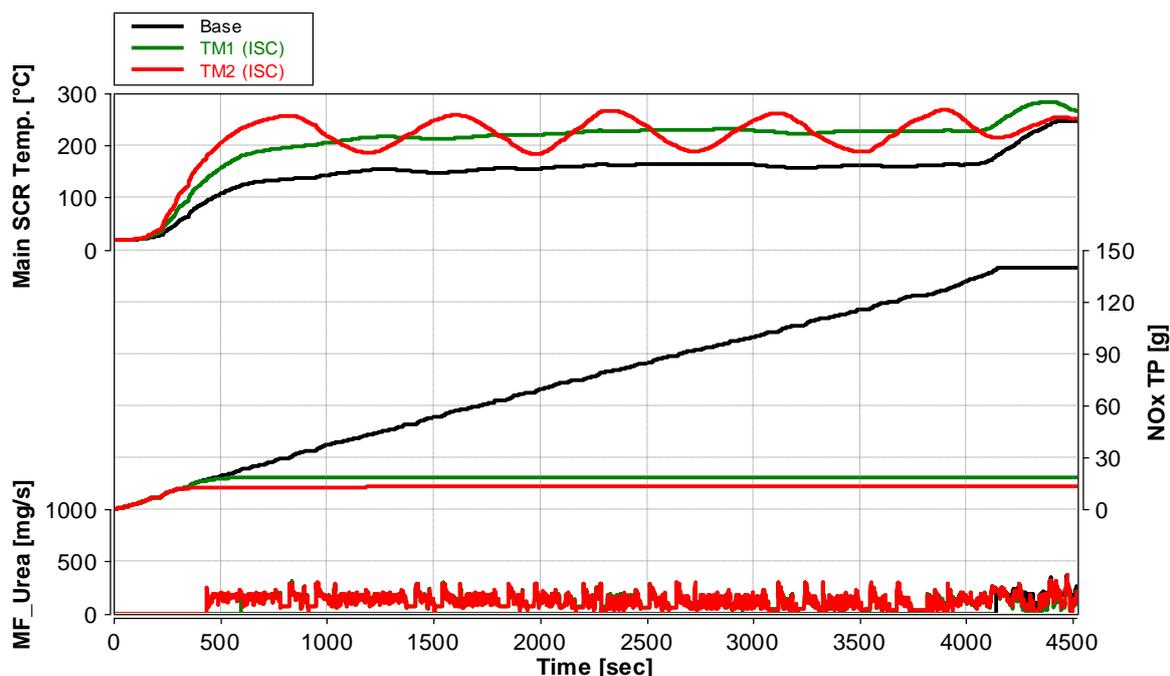


Abbildung 4-13 Vergleich Heizmodi 220 kW ISC, 10 % Fahrzeugbeladung, AGN1 (Stadtteil)

Aus Abbildung 4-13 geht hervor, dass unter Anwendung von Heizmaßnahmen die NO_x -Emissionen im Stadtteil der 220 kW ISC-Runde bei 10 % Fahrzeugbeladung um bis zu 90 % reduziert werden können. Unter Anwendung von TM2 wird bereits nach 440 s die Dosing-Release-Temperatur erreicht, unter Anwendung von TM1 nach 605 s. Ebenso ist ein deutlicher Unterschied in der SCR-Temperatur zwischen den beiden applizierten Heizmodi zu erkennen. Mit TM1 muss nahezu durchgehend geheizt werden, da die SCR-Temperatur immer knapp unter der Zieltemperatur von 230 °C liegt. Unter Anwendung von TM2 können 230 °C am SCR erreicht werden, was zu periodischen Wechseln der Motorbetriebsweise zwischen Heiz- und Fuel-Efficiency-Modus führt.

In Tabelle 4-6 und Tabelle 4-7 sind erreichbare Durchschnittstemperaturen im Stadtteil des ISC-Tests und der damit einhergehende Kraftstoff-Mehrverbrauch relativ zum Basiszyklus zusammengefasst. Die höchsten Temperaturen können durch Anwendung von TM2 erreicht werden. Gleichzeitig führt die Anwendung von TM2 auch zu einem höheren Kraftstoff-Mehrverbrauch als TM1. Bei einer Fahrzeugbeladung von 10 % und der 220 kW Motorvariante (Abbildung 4-13) ist der Unterschied im Mehrverbrauch gering. Dies gilt auch für die 331 kW Motorisierung. Mit steigender Fahrzeugbeladung wird die Differenz im Mehrverbrauch zwischen TM2 und TM1 größer. Dies liegt daran, dass die Motorlast und damit auch die Basistemperatur ansteigen. Folglich kann auch

durch mildere Heizmaßnahmen eine SCR-Temperatur von 230 °C erreicht werden, was insgesamt zu einem geringeren Kraftstoff-Mehrverbrauch führt. Aus Tabelle 4-6 und Tabelle 4-7 geht hervor, dass ab einer Fahrzeugbeladung von 50 % selbst ohne Heizmaßnahmen durchschnittliche Abgastemperaturen > 200 °C im Stadtteil erreicht werden können.

220 kW Fahrzeugbeladung		10%	25%	50%	75%	100%
Basis	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	170	191	218	236	242
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	-	-	-	-	-
TM2	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	241	250	242	257	266
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	2.96	2.80	0.81	0.73	0.72
TM1	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	236	230	234	249	255
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	2.85	1.72	0.57	0.44	0.43

Tabelle 4-6 Abgas-Mitteltemperatur im Stadtteil und Zyklus-Mehrverbrauch im ISC (220 kW)

331 kW Fahrzeugbeladung		10%	25%	50%	75%	100%
Basis	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	197	201	226	242	253
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	-	-	-	-	-
TM2	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	255	252	250	263	272
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	2.45	1.90	0.79	0.62	0.52
TM1	Ø-Abgastemperatur Stadtteil (°C)	249	238	241	253	264
	Mehrverbrauch relativ zur Basis (%)	2.11	1.37	0.53	0.36	0.30

Tabelle 4-7 Abgas-Mitteltemperatur im Stadtteil und Zyklus-Mehrverbrauch im ISC (331 kW)

4.2.2 Auswertung der ISC-Runden

In diesem Abschnitt wird auf die Ergebnisse der unterschiedlichen Konzeptsysteme in den ISC-Tests eingegangen. Alle nachfolgend dargestellten Daten sind im Anhang ab Seite xvii in Tabellen zusammengefasst.

4.2.2.1 Auswertung nach EURO VI D

Abbildung 4-14 und Abbildung 4-15 auf Seite 89 stellen die EURO VI D Conformity-Faktoren für NO_x der unterschiedlichen Konzeptsysteme ohne Anwendung von Heizmaßnahmen dar.

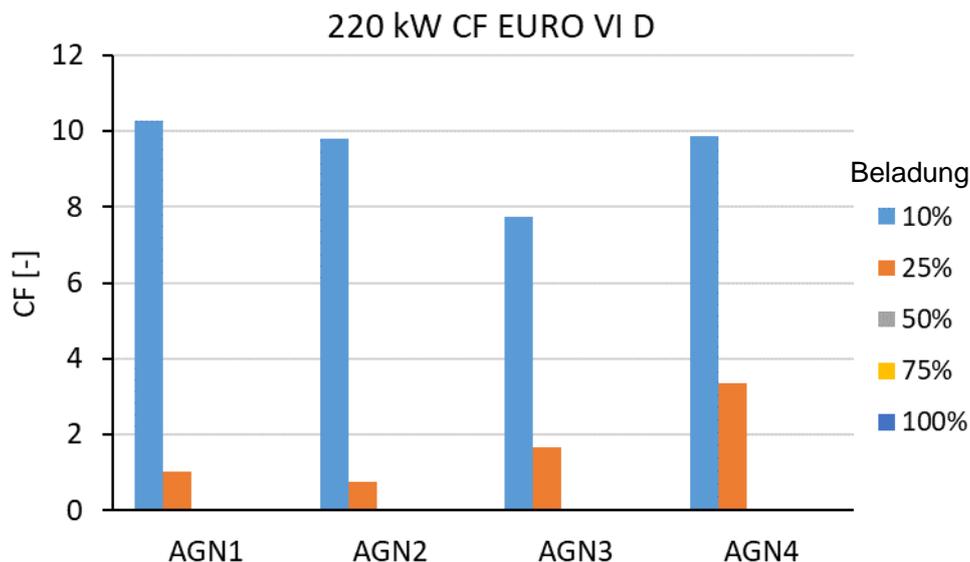


Abbildung 4-14 EURO VI D Conformity-Faktoren 220 kW, keine Heizmaßnahmen

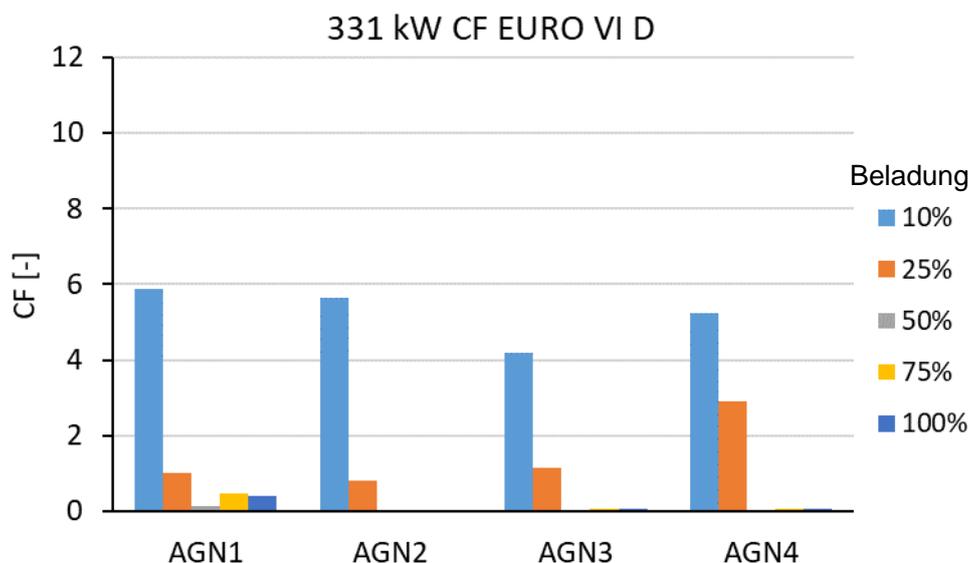


Abbildung 4-15 EURO VI D Conformity-Faktoren 331 kW, keine Heizmaßnahmen

Wie Abbildung 4-14 und Abbildung 4-15 zeigen, können bei Fahrzeugbeladungen $\geq 50\%$ unabhängig von der Motorvariante CF-Werte deutlich unter 1 erreicht werden. Da ohne Heizmaßnahmen bei Fahrzeugbeladungen von 10 und 25 % die Dosing-Release-Temperatur im Stadtteil nicht erreicht werden kann, ergeben sich in diesen Fällen hohe Conformity-Faktoren.

Gemäß EURO VI D beginnt die Auswertung der Emissionen ab dem Erreichen einer Motorkühlwassertemperatur von 70 °C (Aufheizzeiten siehe Tabelle 3-5, Seite 65). Da das Abgasnachbehandlungssystem bis zum Erreichen der Kühlwassertemperatur von

70 °C bereits vorgewärmt wird, ist in den ISC-Tests bei Auswertung nach EURO VI D kein klarer Vorteil der Systeme mit zwei SCR-Stufen gegenüber den anderen Systemvarianten zu erkennen. Ein signifikanter Unterschied in den Conformity-Faktoren zeigt sich jedoch aufgrund der unterschiedlichen Abgastemperaturniveaus zwischen der 220 und der 331 kW Motorvariante.

In Abbildung 4-16 und Abbildung 4-17 auf Seite 91 sind Conformity-Faktoren unter Anwendung von TM1 bei Fahrzeugbeladungen von 10 und 25 % dargestellt. Für Fahrzeugbeladungen ≥ 50 % werden erneut Ergebnisdaten ohne die Applikation von Heizmaßnahmen gezeigt. Alle erreichten Conformity-Faktoren liegen unter 0.5. Die Resultate der Systeme mit zwei SCR-Stufen liegen häufig über jenen des EURO VI Referenzsystems und des SDPF-Systems. Dies liegt daran, dass die erste SCR-Stufe aufgrund des Fehlens eines vorgeschalteten DOCs nicht dieselbe Effizienz aufweist wie der Haupt-SCR und durch den späten Beginn der Datenbewertung der Vorteil der besseren Kaltstartperformance entfällt.

Als kritische Segmente in den ISC-Tests zeichnen sich einige Beschleunigungsphasen im Überland- und Autobahnteil der Runden aus. Neben diesen Events führt auch der hohe Abgas-Massenstrom während des Autobahnteils in manchen Fällen zum Auftreten von NO_x -Schlupf. Speziell das SDPF-System (AGN2) ist aufgrund des großen SCR-Volumens und der damit einhergehenden niedrigen Raumgeschwindigkeit in der Lage NO_x -Peaks in diesen Phasen zu minimieren und erzielt dadurch vor allem bei der 331 kW Motorvariante niedrige Conformity-Faktoren.

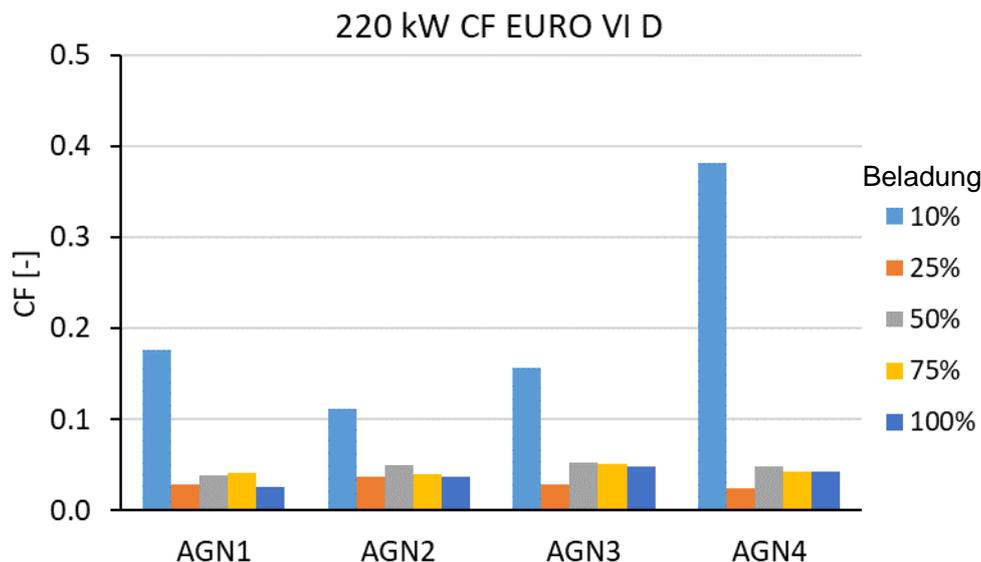


Abbildung 4-16 EURO VI D Conformity-Faktoren 220 kW
TM1 für Fahrzeugbeladungen < 50%

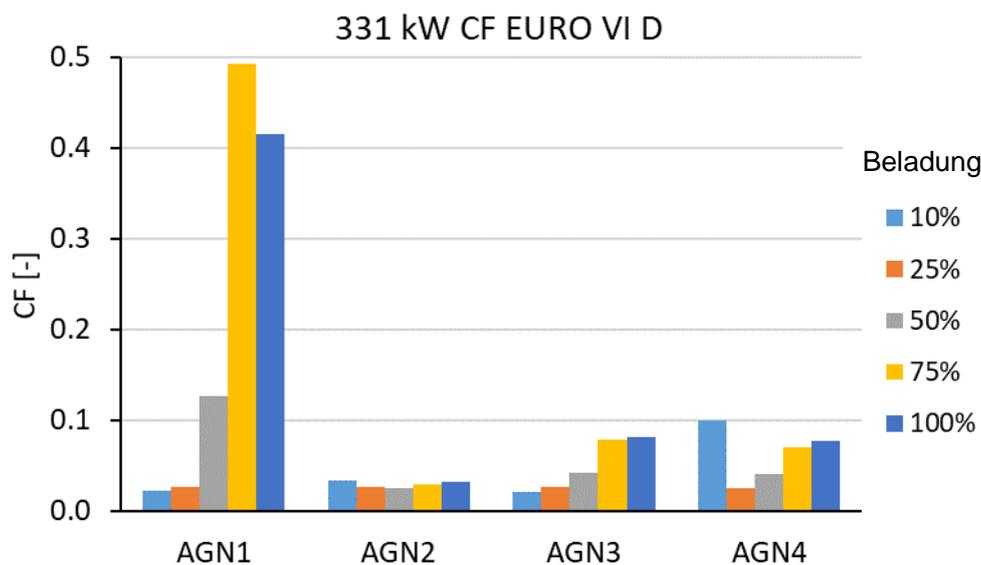


Abbildung 4-17 EURO VI D Conformity-Faktoren 331 kW
TM1 für Fahrzeugbeladungen < 50%

4.2.2.2 Auswertung nach EURO VI E

Ähnlich wie im WHTC wird zur Auswertung von ISC-Tests nach EURO VI E eine kalte und eine warme Phase berücksichtigt. In der kalten Phase wird die Datenauswertung in einem Kühlwasser-Temperaturbereich zwischen 30 und 70 °C durchgeführt. Die Aufheizdauer für alle Testrunden kann Tabelle 3-5 auf Seite 65 entnommen werden. Die warme Phase wird analog zu Vorgaben aus EURO VI D bewertet. Aus beiden

Phasen wird ein Conformity-Faktor bestimmt. Die erhaltenen Werte werden gewichtet addiert (Gewichtung kalt: 14 %; Gewichtung warm: 86 %), wodurch sich der CF für EURO VI E ergibt. Die Conformity-Faktoren aus Abbildung 4-16 und Abbildung 4-17 stellen somit auch die Werte für die Auswertung der warmen Phase nach EURO VI E dar.

Analog zu den Resultaten der ISC-Tests nach EURO VI D können für Fahrzeugbelastungen < 50 % keine gültigen Conformity-Faktoren ohne die Anwendung von Heizmaßnahmen erreicht werden. Nachfolgend werden daher für Fahrzeugbelastungen von 10 und 25 % Ergebnisse unter Anwendung von TM1 gezeigt (eine vollständige Ergebnistabelle kann im Anhang ab Seite xvii eingesehen werden).

In Abbildung 4-18 und Abbildung 4-19 auf Seite 93 sind die Conformity-Faktoren der Kaltstartphasen ($30^{\circ}\text{C} \geq \text{TC} \geq 70^{\circ}\text{C}$; TC = Coolant Temperature) dargestellt. Die Conformity-Faktoren der Kaltstartphase spiegeln denselben Trend wider wie die Ergebnisse der WHTC-Simulationen. Da die Datenbewertung bereits zwischen 70 und 160 s nach Motorstart beginnt, befindet sich die Temperatur des Abgasnachbehandlungssystems zu diesem Zeitpunkt noch in einem Bereich in dem praktisch keine NO_x -Konvertierung stattfindet. Aufgrund des vorgeschalteten zusätzlichen SCR in AGN3 und AGN4 zeigen diese Systeme in der Kaltstartphase niedrigere Conformity-Faktoren als das EURO VI Referenzsystem und das SDPF-System. Die niedrigsten Resultate erreicht wie auch im WHTC AGN3 aufgrund des motornahen, ersten SCR. Infolge des höheren Temperaturniveaus der 331 kW Motorvariante fallen die Conformity-Faktoren bei dieser niedriger aus als bei der 220 kW Variante. Insgesamt sind alle erzielten Conformity-Faktoren während der Kaltstartphasen kleiner als 3.3. Da die Werte aus dem Kaltstart mit 14 % gewichtet werden erhöht sich der EURO VI E Conformity-Faktor im Vergleich zum EURO VI D Wert nur in geringem Maße. Die größte Erhöhung des NO_x -Conformity-Faktors von EURO VI D auf EURO VI E beträgt 0.45 (AGN1, 220 kW, 50 % Fahrzeugbelastung). Die kombinierten EURO VI E Conformity-Faktoren befinden sich für beide Motorvarianten in einem Bereich zwischen 0.05 und 0.7. Die Werte liegen somit deutlich unter dem CF-Grenzwert von 1.5.

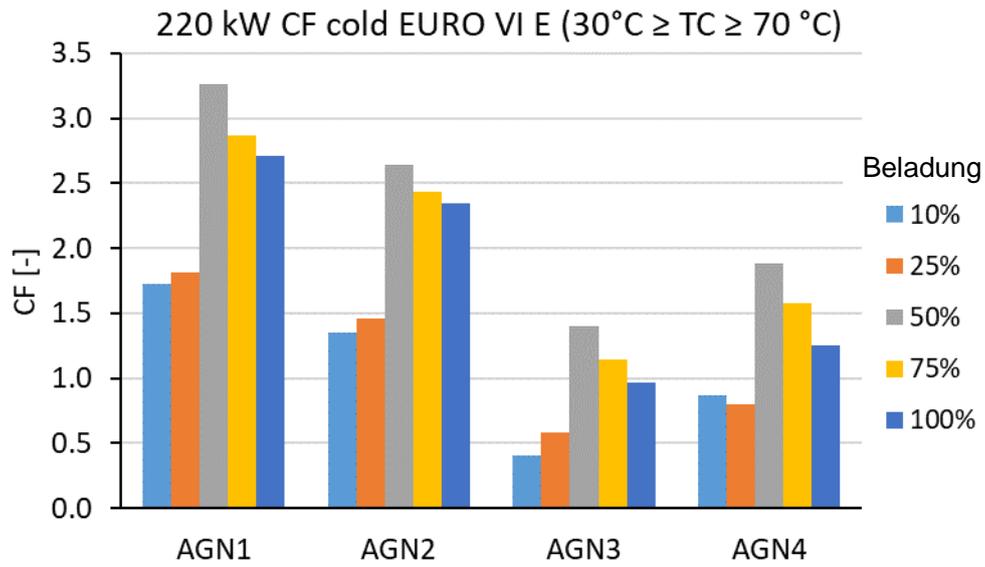


Abbildung 4-18 EURO VI E Conformity-Faktoren der Kaltstartphase, 220 kW TM1 für Fahrzeugbeladungen < 50%

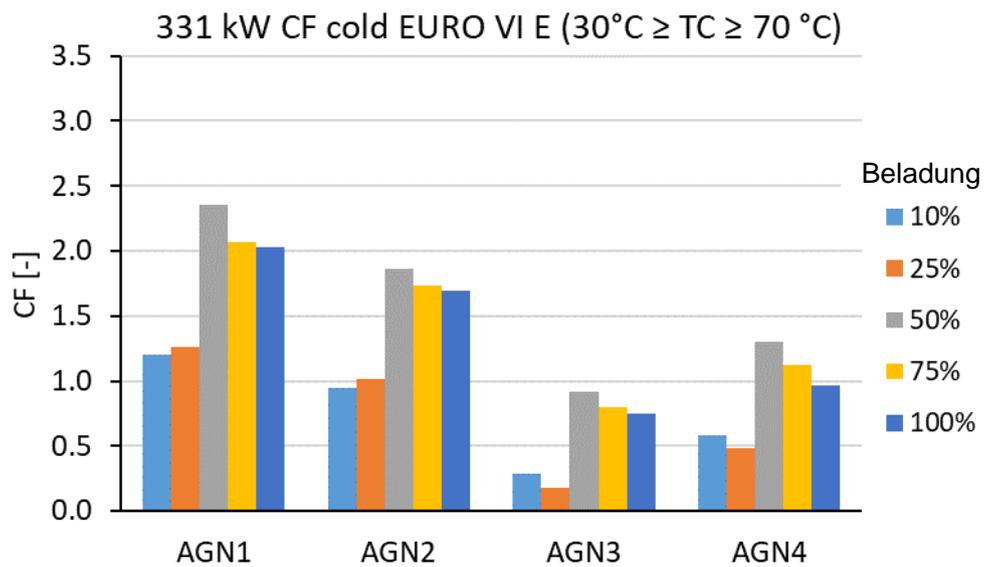


Abbildung 4-19 EURO VI E Conformity-Faktoren der Kaltstartphase, 331 kW TM1 für Fahrzeugbeladungen < 50%

4.2.3 Abgleich der Ergebnisse mit Messdaten

Im Zuge der Arbeit wurden zur Validierung der ISC-Auswerteroutine Messdaten von Fahrzeugen aus der Kategorie N₃ analysiert und mit Ergebnissen aus der offiziellen PEMS-Auswertungssoftware von AVL verglichen. Es haben sich dabei je nach Fahrzeug und Rahmenbedingungen des jeweiligen Tests Conformity-Faktoren deutlich unter 1 sowohl für EURO VI D als auch EURO VI E ergeben. In Tabelle 4-8 sind beispielhafte Resultate aus den analysierten Messdaten zusammengefasst.

CF (EURO VI D)	CF (EURO VI E)
0.57	0.83
0.53	0.83
0.34	0.43
0.68	0.79
0.03	0.17
0.01	0.1
0.01	0.11
0.22	0.34

Tabelle 4-8 ISC Conformity-Faktoren aus Messdaten EURO VI D & E (Quelle: AVL)

In einem Bericht von Scania werden PEMS/ISC-Resultate von rund 35.000 Fahrzeugen mit 450-PS-Motoren ohne AGR zusammengefasst. Die Kilometerleistungen der bewerteten Fahrzeuge bewegen sich von 0-700000 km aufwärts. Die Auswertung der ISC-Runden erfolgte nach EURO VI C.²⁰

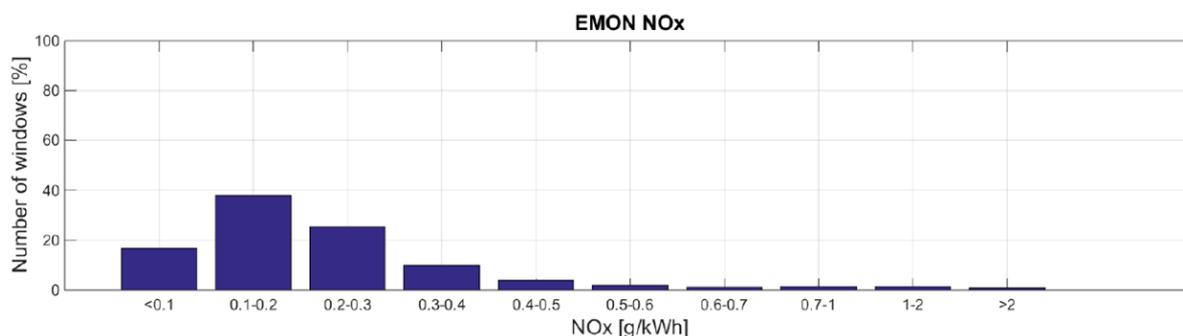


Abbildung 4-20 ISC Resultate Scania Flottenauswertung (90-Perzentile-Regel nicht angewandt)²⁰

²⁰ (Scania, 2018)

In Abbildung 4-20 sind die Ergebnisse aus diesen Messungen dargestellt. Es ist darin eine Häufigkeitsverteilung der NO_x-Emissionen aus allen bewerteten Fenstern abgebildet. Die 90-Perzentil-Regel, welche es erlaubt jene 10 % der Fenster, welche die höchsten NO_x-Emissionen aufweisen, zu streichen, wurde in Abbildung 4-20 noch nicht angewandt. Exkludiert man diese, so verbleiben maximale NO_x-Emissionen von 0.4-0.5 g/kWh. Dies würde folglich einem Conformity-Faktor im Bereich von 0.87-1.09 für die getesteten Fahrzeuge entsprechen.

4.3 Diskussion und Interpretation

Die Simulationsstudie hat ergeben, dass der Einsatz einer zweiten SCR-Stufe im WHTC ein deutliches Verbesserungspotential bezüglich NO_x -Reduktion gegenüber einem typischen EURO VI Abgasnachbehandlungssystem mit sich bringt. Vor allem bei Anordnung der zusätzlichen SCR-Stufe nahe am Auslass des Motors können signifikant niedrigere NO_x -Emissionen realisiert werden. Unter Anwendung von Heizmaßnahmen kann ein solches System im Vergleich mit einem EURO VI Standardsystem um rund 70 % niedrigere NO_x -Emissionen erreichen. Entscheidend dafür ist die, gegenüber einem EURO VI Standardsystem maßgeblich verbesserte, Kaltstart-Performance eines solchen Systems.

Die Bestsysteme im WHTC erreichten nicht zwangsläufig auch die niedrigsten NO_x -Conformity-Faktoren in den ISC-Tests. Da gemäß EURO VI D die Datenanalyse erst nach dem Erreichen einer Kühlwassertemperatur von 70 °C beginnt, sind die Systeme am Beginn der Test-Bewertung bereits aufgeheizt. Daher entfällt ein essentieller Vorteil der zweistufigen Systeme: Die verringerte thermische Masse vor dem ersten SCR, welche im WHTC einen früheren Umsatz von NO_x ermöglicht. Aufgrund der Tatsache, dass sich die erste SCR-Stufe bei AGN3 und AGN4 jeweils vor dem DOC befindet, ist vor dieser das NO_2/NO_x -Verhältnis im Abgas niedrig. Die erste SCR-Stufe erreicht dadurch nicht die gleiche Effizienz wie der Haupt-SCR, welchem der DOC vorgeschaltet ist. Speziell das untersuchte SDPF-System, welches das größte SCR-Gesamtvolumen aufweist, erzielt im realen Fahrbetrieb niedrige Conformity-Faktoren. Bei Fahrzeugbeladungen < 50 % müssen in ISC-Tests Heizmaßnahmen appliziert werden, um ausreichend hohe Temperaturen im Stadtteil der Testrunden gewährleisten zu können. Der Betrieb des Motors im Heizmodus führt zu einem Kraftstoff-Mehrverbrauch von rund 3 % gegenüber dem Fuel-Efficiency-Modus. Durch Anwendung von Heizmaßnahmen konnten in der Simulationsstudie auch bei niedriger Fahrzeugbeladung mit allen untersuchten Systemen EURO VI D Conformity-Faktoren < 0.5 erreicht werden. Diese Werte sind mit Messdaten unterschiedlicher Fahrzeuge aus der Kategorie N_3 vergleichbar.

Der Vorteil der Abgasnachbehandlungssysteme mit zwei SCR-Stufen zeigt sich vor allem bei der Bewertung der ISC-Testrunden nach EURO VI E, da bei dieser Variante der EURO VI Gesetzgebung der Kaltstart auch erstmals evaluiert wird. Ähnlich zum

gesetzlichen Prüfstandszyklus (WHTC), konnte AGN3 aufgrund der motornahen, ersten SCR-Stufe die niedrigsten Conformity-Faktoren in den ISC-Kaltstartphasen erreichen. Auch die kombinierten Conformity-Faktoren nach EURO VI sind bei Einsatz von AGN3 am niedrigsten. Die CF-Höchstwerte haben sich verglichen mit EURO VI E auf 0.7 verschlechtert. Es handelt sich hierbei um eine Größenordnung, welche nach wie vor weit unter dem gesetzlichen Maximum von 1.5 liegt.

Unter den untersuchten Systemen erreichen Standardsysteme und Systeme mit einem SDPF nach derzeit gültigen Rahmenbedingungen im ISC niedrigere Conformity-Faktoren als Systeme mit zwei SCR-Stufen. Hauptverantwortlich dafür ist das Fehlen eines DOCs vor der ersten SCR-Stufe in den analysierten, mehrstufigen Systemen. Dadurch bedingt verringert sich die deNO_x-Effizienz des Gesamtsystems, da vor der ersten SCR-Stufe niedrige NO₂/NO_x-Verhältnisse im Abgas vorliegen. Um diesen Nachteil zu kompensieren, könnte die Anordnung eines weiteren DOCs vor der ersten SCR-Stufe Abhilfe schaffen. Je größer die Bedeutung des Kaltstarts zukünftig wird, desto eher zeigen analog zum WHTC zweistufige Systeme bessere Fähigkeit zur NO_x-Konvertierung.

Systeme, welche nach EURO VI D niedrige NO_x-Conformity-Faktoren erreichen, können ebenfalls den Kriterien, welche mit EURO VI E eingeführt werden, bestehen. Unabhängig davon, ob die Bewertung nach EURO VI D oder E durchgeführt wird, stellt das schnellstmögliche Erreichen der Betriebstemperatur im Abgasnachbehandlungssystem die grundlegende Bedingung zum Bestehen von ISC-Tests dar. Kritisch dafür sind vor allem jene Testrunden, welche mit einer niedrigen Fahrzeugbeladung absolviert werden. Aufgrund der niedrigen Motorlast speziell im Stadtteil der ISC-Tests müssen in solchen Fällen Heizmaßnahmen angewendet werden. Für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Systeme und SCR-Reaktionskinetiken hat sich das Erreichen von durchschnittlichen Abgastemperaturen > 210 °C im Stadtteil als Pflichtkriterium zum Bestehen der ISC-Tests abgezeichnet.

5 Zusammenfassung

Die Literaturstudie, welche zu Beginn der Arbeit zur europäischen Gesetzgebung und zum aktuellen Stand der Technik bezüglich SCR-basierter NO_x-Reduktionsverfahren durchgeführt wurde, hat ergeben, dass derzeit Eisen-, Kupfer- und Vanadium-SCR-Beschichtungen im Nutzfahrzeugbereich vorherrschend sind. Für 2020 ist die Einführung einer weiteren Stufe im Rahmen der EURO VI Abgasnorm geplant. Diese wird als EURO VI E bezeichnet und bringt vor allem für Tests zum Nachweis von Emissionen im realen Fahrbetrieb Verschärfungen mit sich. Unter anderem wird mit EURO VI E das Einhalten von Partikelanzahlemissionen als weiteres Pflichtkriterium in das ISC-Testverfahren aufgenommen. Ebenso wird die Bewertung der NO_x-Emissionen in ISC-Tests mit EURO VI E adaptiert. Zukünftig wird der System-Kaltstart erstmals in die Emissionsbewertung miteinbezogen. Messungen müssen dazu bereits ab dem Erreichen einer Motorkühlwassertemperatur von 30 °C anstatt der 70 °C wie in EURO VI D ausgewertet werden. Dadurch ergibt sich die Anforderung an Abgasnachbehandlungssystem und Betriebsstrategie, ein schnellstmögliches Aufheizen des Systems zu gewährleisten, da für den effektiven Umsatz von NO_x Temperaturen von mindestens 200 °C am SCR-Katalysator benötigt werden. Im Zuge der Arbeit wurden vier verschiedene Systemlayouts simulationsbasiert untersucht und Heizmaßnahmen appliziert, um die höchstmögliche Effizienz der Abgasnachbehandlung zu ermöglichen.

In der vorliegenden Arbeit wurde ein 40-Tonnen-LKW mit zwei unterschiedlichen Motorisierungen betrachtet. Die Nennleistungen für die beiden Motorvarianten liegen bei 220 und 331 kW. Zunächst wurde das Fahrzeug im VECTO-Tool abgebildet, um ISC-Testfahrten zu simulieren. ISC-Testrunden werden basierend auf dem WHTC (derzeit gültige transiente Testprozedur für Nutzfahrzeugmotoren in der EU am Prüfstand) definiert. Die Länge einer ISC-Testrunde muss sich in einem Bereich von 4-8 Mal der Arbeit oder der CO₂-Emissionen eines WHTC bewegen. In ISC-Tests werden Stadt-, Überland und Autobahnregionen durchfahren. Die Emissionsbewertung wird über sich bewegende Fenster nach der Methode des gleitenden Durchschnitts durchgeführt. Die Länge eines Fensters entspricht der Arbeit oder den CO₂-Emissionen eines WHTC. Seit EURO VI D muss mindestens ein gültiges Fenster (bezogen auf NO_x) im Stadtteil des Tests erreicht werden. Damit ein Fenster gültig ist, muss zusätzlich eine durchschnittliche Motorleistung > 10 % der Maximalleistung erreicht werden. Ebenfalls muss ein Fahrzeug nach EURO VI D für einen Beladungsbereich von 10-100 % (relativ

zur Differenz zwischen maximal zulässigem Gesamtgewicht und Leergewicht) in der Lage sein, gesetzeskonforme Emissionen aufzuweisen. Aufgrund der vielseitigen Anforderungen für Tests im realen Fahrbetrieb mussten in der Arbeit insgesamt sechs verschiedene Runden definiert werden, um für beide Motorvarianten alle ISC-Kriterien zu erfüllen. Die Längen dieser Testrunden bewegen sich im Bereich von 91-203 km. Dieser Arbeitsschritt zeigt die Komplexität von ISC-Tests auf. Bereits bei der Auslegung der Testrunden muss beträchtlicher Aufwand betrieben werden, um alle eventuell geforderten Szenarien abzudecken.

Bei den vier untersuchten Abgasnachbehandlungssystemen handelt es sich um ein EURO VI Referenzsystem, ein System mit SDPF und zwei Systeme mit zwei SCR-Stufen. Die zweistufigen Systeme haben das gleiche SCR-Gesamtvolumen wie das Referenzsystem. Bei einem dieser Systeme ist die erste SCR-Stufe motornah platziert, während sie beim zweiten direkt vor dem ersten Katalysator des EURO VI Systems angeordnet ist. Das System mit der motornahen, ersten SCR-Stufe zeigt aufgrund der geringen thermischen Masse vor dem ersten SCR-Katalysator das beste Verhalten in Kaltstartphasen. Die erste SCR-Stufe wird schnell aufgeheizt, wodurch bereits früh im Zyklus NO_x konvertiert werden kann. Im Zuge der Simulationsstudie wurden SCR-Volumina, sowie Technologien der Substrate variiert. Zur Verfügung standen dazu die NO_x -Umsatzkinetiken zweier kupfer- und eines vanadiumbasierten SCR-Katalysators, welche in der AVL Modelldatenbank vorliegen. Für alle untersuchten Systeme wurde zunächst im WHTC eine Optimierung durchgeführt. Die beste Systemperformance konnte unter Verwendung einer Kupfer-Formulierung als SCR-Beschichtung erreicht werden. Durch die Applikation von Heizmaßnahmen im WHTC sind die Systeme in der Lage NO_x -Emissionen im Bereich von 0.04-0.15 g/kWh zu erzielen. Das niedrigste Ergebnis wurde vom zweistufigen System mit motornaher, erster SCR-Stufe erreicht. Das EURO VI Referenzsystem weist die höchsten NO_x -Emissionen im WHTC auf.

Ohne die Applikation von Heizmaßnahmen ist es in ISC-Tests bei Fahrzeugbeladungen < 50 % nicht möglich, gültige Conformity-Faktoren zu erzielen. Dies liegt daran, dass im Stadtteil der ISC-Tests bei geringer Fahrzeugbeladung Abgastemperaturen, welche zur Dosierfreigabe benötigt werden, nicht erreicht werden können. Als Kriterium zum Bestehen der ISC-Tests sowohl nach EURO VI D als auch EURO VI E hat sich in der Simulationsstudie das Erreichen einer durchschnittlichen Abgastemperatur im Stadtteil > 210 °C herausgestellt. Das Bereitstellen dieser Temperaturen würde bei

Anwendung eines motorseitigen Heizmodus einen Kraftstoff-Mehrverbrauch von 1.4-2.9 % bezogen auf den gesamten ISC-Test hervorrufen. Sind die Temperaturen im Stadtteil des ISC-Tests hoch genug, so sind alle untersuchten Systeme in der Lage die Tests nach EURO VI D und EURO VI E zu bestehen. Die Conformity-Faktoren nach EURO VI D bewegen sich in einem Bereich von 0.02-0.5. Besonders das SDPF-System kann hier sehr niedrige Werte erzielen. Die schlechtesten Resultate erreichen das zweistufige System mit der ersten SCR-Stufe vor dem DOC und das EURO VI Referenzsystem. Bei der Auswertung nach EURO VI E steigen die Conformity-Faktoren leicht an und es ergeben sich Werte zwischen 0.05 und 0.7. Da gemäß EURO VI E die Bewertung der Emissionen bereits früh beginnt, weisen hier analog zum WHTC die zweistufigen Systeme niedrigste Conformity-Faktoren auf. Die Resultate aus der Simulationsstudie liegen im gleichen Bereich wie Conformity-Faktoren, welche aus Messungen ausgewertet wurden. Das Einhalten des NO_x-Conformity-Faktors nach EURO VI E ist demzufolge für Systeme, welche in EURO VI D bereits niedrige Emissionen erreichen, nicht kritisch.

Sollte das Limit für NO_x-Emissionen sowohl im gesetzlichen Zyklus als auch für Emissionen im realen Fahrbetrieb weiter reduziert werden, wie es für EURO VII erwartet wird, scheint aus heutiger Sicht eine Änderung der Systemarchitektur von Diesel-Abgasnachbehandlungssystemen, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit vorgeschlagen wurde, unumstößlich.

6 Verzeichnis

6.1 Literatur

- Bin Guan, R. Z. (2014). Review of state of the art technologies of selective catalytic reduction. In *Applied Thermal Engineering* (S. 395-414). Elsevier.
- Bin Guan, R. Z. (2015). Review of the state-of-the-art of exhaust particulate filter technology. In *Journal of Environmental Management* (S. 225-258). Elsevier.
- Dieselnet HD EU Emission Standards*. (August 2018). Von <https://www.dieselnet.com/standards/eu/hd.php> abgerufen
- Dieselnet SCR Catalyst Technology*. (Oktober 2018). Von https://www.dieselnet.com/tech/cat_scr.php abgerufen
- Dieselnet WHSC*. (August 2018). Von <https://www.dieselnet.com/standards/cycles/whsc.php> abgerufen
- Dieselnet WHTC*. (August 2018). Von <https://www.dieselnet.com/standards/cycles/whtc.php> abgerufen
- Europäische Union. (1997). RICHTLINIE 97/68/EG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES., (S. 184-185).
- European Commission. (2018). 74th meeting of the Technical Committee - Motor vehicles (TCMV).
- Isabella Nova, E. T. (2014). *Urea-SCR Technology for deNOx After Treatment of Diesel Exhausts*. Milan: Springer.
- Kamasamudram, K. H. (2012). *N2O Formation and Mitigation in Diesel Aftertreatment Systems*. SAE Int. J. Engines.
- Official Journal of the European Communities. (1970). COUNCIL DIRECTIVE 70/156/EEC.
- Official Journal of the European Union. (2001). COMMISSION DIRECTIVE 2001/116/EC.
- Official Journal of the European Union. (2011). COMMISSION REGULATION (EU) 582/2011.
- Official Journal of the European Union. (2016). COMMISSION REGULATION (EU) 2016/1718.
- Official Journal of the European Union. (2018). COMMISSION REGULATION (EU) 2018/932.
- Ronald M. Heck, R. J. (2009). *Catalytic Air Pollution Control - Commercial Technology*. Wiley.
- Rudolf Pischinger, M. K. (2009). *Thermodynamik der Verbrennungskraftmaschine*. Springer Vienna.
- Sams, T. (Oktober 2016). Schadstoffbildung und Emissionsminimierung bei KFZ. Graz.
- Scania. (2018). *Powertrain Integration to Enhance Real Driving Emissions and Customer Value*.
- Siebenhofer, M. (2017). *Chemical Reaction Engineering II - Skript*. Graz.
- Susanne Lux, D. P. (2015). *Reaktionstechnik I - Skriptum*. Graz.
- United Nations. (2013). Addendum 48: Regulation No. 49, Rev. 6., (S. 118 ff).

6.2 Abbildungen

Abbildung 2-1 HC- über NO _x -Emissionen eines NFZ Motors für charakteristische Lastpunkte ²	6
Abbildung 2-2 NO _x /Ruß-Trade-off in Abhängigkeit von AGR-Rate, Einspritzdruck und Ladedruck ²	9
Abbildung 2-3 Aktivierungsenergie der Oxidation von CO zu CO ₂ ; Vergleich zwischen (a) nicht-katalysierter (E _{NC}) und (b) katalysierter (E _C) Reaktion ⁴	12
Abbildung 2-4 CO-Umsatz in Abhängigkeit der Reaktionstemperatur; Vergleich katalysierte und nicht-katalysierte Reaktion ⁴	12
Abbildung 2-5 Idealisertes Modell zur Darstellung katalytisch aktiver Stellen auf einem Al ₂ O ₃ Washcoat gebunden an einen Monolith ⁴	15
Abbildung 2-6 Verlauf der Geschwindigkeit von Stofftransport (bulk mass transfer), Porendiffusion und der Reaktionskinetik in Abhängigkeit von der Temperatur ⁴	19
Abbildung 2-7 Aufbau eines SCR-Abgasnachbehandlungssystems für Dieselabgase mit DOC, DPF und SCR + ASC ⁷	21
Abbildung 2-8 Effekt von unterschiedlichen Pd-Massenanteilen im Verhältnis zu Pt auf die Performance eines DOC ⁷	23
Abbildung 2-9 Aufbau von DPF Substraten (wall-flow). a) Vorderansicht, b) Seitenansicht ⁷	25
Abbildung 2-10 Anwendungsbereich von SiC und Cordierit Partikelfiltern ³	26
Abbildung 2-11 Asymmetrische Zellstruktur (ACT) bei Partikelfiltern. a) Vergleich zwischen DPF mit symmetrischem und asymmetrischem Kanaldesign (Vorderansicht). b) Einfluss auf den Gegendruck bei variabler Ruß- und Aschebelastung ³	27
Abbildung 2-12 NO _x -Umsatz in Abhängigkeit vom NO ₂ /NO _x -Verhältnis vor dem SCR bei 200 °C ⁷	29
Abbildung 2-13 Aufbau eines SCR; Vergleich beschichteter Monolith und extrudierter Monolith aus katalytisch aktivem Material ⁷	31
Abbildung 2-14 deNO _x -Effizienz von Cu- und Fe-Zeolithen ¹⁰	32
Abbildung 2-15 deNO _x -Effizienz von V-Katalysatoren ⁷	34
Abbildung 2-16 NO _x -Umsatzrate von Cu-, Fe- und V-SCRs in Abhängigkeit von der Temperatur. Daten zeigen die Performance nach 64 h Alterung bei 670 °C (entspricht ungefähr 190000 Fahrzeugkilometern) ¹⁰	35
Abbildung 2-17 Darstellung der ablaufenden chemischen und physikalischen Prozesse in einem SDPF ¹⁰	36
Abbildung 2-18 Aufbau eines ASC dual-layer Washcoats auf einem monolithischen Substrat.....	39
Abbildung 2-19 Entwicklung von ASCs über vier Generationen (Gen 4: neu; Gen 1: alt) ⁷	40
Abbildung 2-20 Schematische Darstellung des WHTC (World Harmonized Transient Cycle).....	43
Abbildung 2-21 Schematische Darstellung des WHSC (World Harmonized Stationary Cycle).....	44
Abbildung 2-22 Fenster nach gleitendem Durchschnitt basierend auf geleisteter Arbeit.....	49
Abbildung 2-23 Fenster nach gleitendem Durchschnitt basierend auf CO ₂ -Emissionen.....	50
Abbildung 3-1 Vorgesehener Workflow.....	54
Abbildung 3-2 Schematische Darstellung der untersuchten Systemkonzepte.....	55
Abbildung 3-3 Vollast- und Schleppkurve 220 und 331 kW Nennleistung.....	57

Abbildung 3-4 VECTO Simulation vs. Referenz: Fahrzeuggeschwindigkeit	58
Abbildung 3-5 VECTO Simulation vs. Referenz: Motordrehzahl.....	58
Abbildung 3-6 VECTO Simulation vs. Referenz: Drehmoment.....	59
Abbildung 3-7 N ₃ ISC Basismessung (Stand EURO VI C)	60
Abbildung 3-8 Angepasste N ₃ ISC-Runde nach EURO VI D Standards.....	61
Abbildung 3-9 Gültige ISC Runde für 220 kW Motorleistung und 50 % Fahrzeugbeladung (ohne NO _x -Bewertung).....	63
Abbildung 3-10 ISC Ergebnisdaten der Motorsimulation (220 kW, 100 % Fahrzeugbeladung)	64
Abbildung 3-11 AGN1.....	68
Abbildung 3-12 AGN2.....	68
Abbildung 3-13 AGN3.....	69
Abbildung 3-14 AGN4.....	69
Abbildung 3-15 Gastemperaturerhöhung durch Heizmaßnahmen; 220 kW WHTC (blau: Basis, grün: TM1; rot: TM2)	70
Abbildung 4-1 Einfluss der Gastemperatur auf die Systemperformance (AGN1, 220 kW, 21.7 l SCR, Kinetik: Cu-1)	75
Abbildung 4-2 Einfluss des SCR-Volumens auf die Systemperformance (AGN1, 220kW, Kinetik: Cu-2, kein Heizmodus)	76
Abbildung 4-3 Einfluss der Verteilung SCR-Volumens auf die Systemperformance (AGN3, 220 kW, 26.1 l SCR-Gesamtvolumen, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-1 (beide SCR-Substrate))	78
Abbildung 4-4 Vergleich der unterschiedlichen Konzeptlayouts (331 kW, kein Heizmodus, Basissysteme, Kinetik SCR-Substrate: Cu-1)	79
Abbildung 4-5 NO _x -Konvertierung des SCR, Cu-1 (SV = 100k)	81
Abbildung 4-6 NO _x -Konvertierung des SCR, Cu-2 (SV = 100k)	81
Abbildung 4-7 NO _x -Konvertierung des SCR, V (SV = 100k).....	82
Abbildung 4-8 AGN3, 220 kW, Variation von Haupt-SCR Kinetik und Heizmaßnahmen	82
Abbildung 4-9 AGN3, 331 kW, Variation von Haupt-SCR Kinetik und Heizmaßnahmen	83
Abbildung 4-10 WHTC BSNO _x TP-Resultate der Bestsysteme	84
Abbildung 4-11 ISC-Test 220 kW, 10 % Fahrzeugbeladung, Vergleich der Konzeptlayouts	85
Abbildung 4-12 ISC-Test 331 kW, 10 % Fahrzeugbeladung, Vergleich der Konzeptlayouts	86
Abbildung 4-13 Vergleich Heizmodi 220 kW ISC, 10 % Fahrzeugbeladung, AGN1 (Stadtteil)	87
Abbildung 4-14 EURO VI D Conformity-Faktoren 220 kW, keine Heizmaßnahmen..	89
Abbildung 4-15 EURO VI D Conformity-Faktoren 331 kW, keine Heizmaßnahmen..	89
Abbildung 4-16 EURO VI D Conformity-Faktoren 220 kW.....	91
Abbildung 4-17 EURO VI D Conformity-Faktoren 331 kW.....	91
Abbildung 4-18 EURO VI E Conformity-Faktoren der Kaltstartphase, 220 kW.....	93
Abbildung 4-19 EURO VI E Conformity-Faktoren der Kaltstartphase, 331 kW.....	93
Abbildung 4-20 ISC Resultate Scania Flottenauswertung (90-Perzentile-Regel nicht angewandt).....	94
Abbildung 7-1 203 km ISC-Runde; 220 kW: 10 % Fahrzeugbeladung	ix
Abbildung 7-2 122 km ISC-Runde; 220 kW: 25 & 50 % Fahrzeugbeladung;.....	ix
Abbildung 7-3 110 km ISC-Runde; 220 kW: 75 % Fahrzeugbeladung	x
Abbildung 7-4 91 km ISC-Runde; 220 kW: 100 % Fahrzeugbeladung	x
Abbildung 7-5 203 km ISC-Runde; 331 kW: 10 % Fahrzeugbeladung (203 km).....	x

Abbildung 7-6 203 km ISC-Runde; 331 kW: 25 % Fahrzeugbeladung (203 km)	xi
Abbildung 7-7 NO ₂ -Bildung des DOC (SV = 100k)	xii
Abbildung 7-8 HC-Konvertierung des DOC (SV = 100k)	xiii
Abbildung 7-9 NO ₂ -Bildung des DPF (SV = 100k)	xiii
Abbildung 7-10 NO _x -Konvertierung des SDPF (SV = 100k)	xiv
Abbildung 7-11 N ₂ O-Bildung des SDPF (SV = 100k)	xiv
Abbildung 7-12 N ₂ O-Bildung des SCR Cu-1 (SV = 100k)	xv
Abbildung 7-13 N ₂ O-Bildung des SCR Cu-2 (SV = 100k)	xv
Abbildung 7-14 NH ₃ Konvertierungsrate des ASC (SV = 100k)	xvi
Abbildung 7-15 N ₂ O Bildung des ASC (SV = 100k)	xvi

6.3 Tabellen

Tabelle 2-1 Typische Schwefelgehalte von Erdölprodukten; Angaben in Massenprozent ²	7
Tabelle 2-2 Vergleich zwischen V, Fe und Cu SCR-Katalysatoren (Quelle: AVL).....	30
Tabelle 2-3 EU Emissionsstandards für HD Dieselmotoren (stationär).....	42
Tabelle 2-4 EU Emissionsstandards für HD Diesel- und Gasmotoren (transient).....	42
Tabelle 2-5 Zeitbasierte Zusammensetzung von ISC-Tests für Nutzfahrzeuge.....	46
Tabelle 2-6 Maximal zulässiger Conformity-Faktor pro Abgaspezies.....	48
Tabelle 2-7 Zeitliche Entwicklung des ISC-Kriterienkatalogs.....	52
Tabelle 3-1 Testmatrix Fahrzeug und Motor.....	54
Tabelle 3-2 Untersuchte Abgasnachbehandlungssysteme.....	55
Tabelle 3-3 Betrachtete Gesetzgebungen.....	56
Tabelle 3-4 Übersicht: gültige ISC-Testrunden (ohne NO _x -Bewertung).....	63
Tabelle 3-5 Aufheizzeiten des Motorkühlwassers für verschiedene Fahrzeugbeladungen und Motorleistungen.....	65
Tabelle 3-6 Katalysator-Basisvolumina der Konzeptsysteme.....	67
Tabelle 3-7 WHTC NH ₃ -Startbeladung der verschiedenen Systeme.....	69
Tabelle 3-8 Übersicht WHTC Durchschnittstemperaturen nach Temperaturerhöhung.....	71
Tabelle 3-9 Übersicht WHTC Simulationsmatrix pro untersuchtem System.....	71
Tabelle 4-1 BSNO _x -TP AGN1 (220 kW, 21.7 l SCR, Kinetik: Cu-1).....	76
Tabelle 4-2 BSNO _x -TP AGN1 (220 kW, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-2).....	77
Tabelle 4-3 BSNO _x nach 1. SCR & TP AGN3 (220 kW, SCR-Gesamtvolumen 26.1 l, kein Heizmodus, Kinetik: Cu-1 (beide SCR-Substrate)).....	79
Tabelle 4-4 BSNO _x TP Vergleich Basissysteme (331 kW, kein Heizmodus, Kinetik SCR-Substrate: Cu-1).....	80
Tabelle 4-5 SCR-Volumina der Bestsysteme.....	84
Tabelle 4-6 Abgas-Mitteltemperatur im Stadtteil und Zyklus-Mehrverbrauch im ISC (220 kW).....	88
Tabelle 4-7 Abgas-Mitteltemperatur im Stadtteil und Zyklus-Mehrverbrauch im ISC (331 kW).....	88
Tabelle 4-8 ISC Conformity-Faktoren aus Messdaten EURO VI D & E (Quelle: AVL).....	94
Tabelle 7-1 Nutzfahrzeugkategorien in der EU.....	viii
Tabelle 7-2 Conformity-Faktoren ISC ohne Heizmaßnahmen.....	xvii
Tabelle 7-3 Conformity-Faktoren ISC TM1.....	xviii
Tabelle 7-4 Conformity-Faktoren ISC TM2.....	xviii

6.4 Symbole und Abkürzungen

6.4.1 Abkürzungen

A, B, C, D	Reaktanden, Komponenten
ACT	Asymmetric Cell Technology
AGN	Abgasnachbehandlungssystem
AGR	Abgasrückführung
ANR	Ammonia to NO _x Ratio, molar [-]
ASC	Ammonia Slip Catalyst
BSNO _x	brake-specific-NO _x [g/kWh]
CARB	California Air Resources Board
CPSI	Channels Per Square Inch
DEF	Diesel Exhaust Fluid
deNO _x	NO _x -Umsatz
DOC	Diesel Oxidation Catalyst
DPF	Diesel Particulate Filter
EEV	Enhanced Environmentally Friendly Vehicle
EPA	Environmental Protection Agency
FTP	Federal Test Procedure (transienter Prüfstandstest, USA)
GRPE	The Working Party on Pollution and Energy
HC	Hydrocarbons (Kohlenwasserstoffe)
HD	Heavy Duty
ISC	In-Service-Conformity
md	Drehmoment [Nm]
mf	mass-flow
mil	Milliinch
MM	molare Masse
n	Drehzahl [rpm]
NFZ	Nutzfahrzeug
NMHC	Non-methane hydrocarbons
NO _x	Stickstoffoxide (Summe von NO und NO ₂)
PAH	Polycyclic aromatic hydrocarbon
PEMS	Portable Emissions Measurement System

PGM	Platin Group Metals
PM	Partikelmasse (particulate mass)
PN	Partikelanzahl (particulate number)
ppm	parts per million (Konzentrationsangabe)
PWR	Leistung [kW]
S	Selektivität [-]
SCR	Selective Catalytic Reduction
SDPF	Partikelfilter mit SCR-Beschichtung zur NO _x -Konvertierung
SV	Space Velocity (Raumgeschwindigkeit)
TC	Kühlwassertemperatur
THC	Summe aller Kohlenwasserstoffe (total hydrocarbons)
TM	Thermal Management
TP	Tailpipe (Austritt des Abgasnachbehandlungssystems)
TWC	Three-Way-Catalyst (Dreiwegekatalysator)
VECTO	Vehicle Energy Consumption Calculation Tool
VL	Vollast(-kurve)
WHSC	World Harmonized Stationary Cycle
WHTC	World Harmonized Transient Cycle
Y	Ausbeute [-]
λ	Verbrennungsluftverhältnis [-]

6.4.2 Indizes tiefgestellt

0	(in Reaktor) eintretend
AG	Abgas
out	(aus Reaktor) austretend
stöch	stöchiometrisch

7 Anhang

7.1 Fahrzeugklassen in der EU

Nachfolgende Tabelle zeigt eine Zusammenfassung der Nutzfahrzeugklassen in der EU.^{21, 22}

Kategorie M : Fahrzeuge zur Personenbeförderung mit mindestens 4 Rädern oder 3 Rädern und einem Maximalgewicht von 1 t	
M₁	Fahrzeuge für den Personentransport mit 8 + 1 Sitzen
M₂	Fahrzeuge für den Personentransport mit mehr als 8 + 1 Sitzen und einer Gesamtmasse < 5 t
M₃	Fahrzeuge für den Personentransport mit mehr als 8 + 1 Sitzen und einer Gesamtmasse > 5 t
Kategorie N : Fahrzeuge für den Transport von Gütern mit mindestens 4 Rädern	
N₁	Fahrzeuge für den Transport von Gütern mit einer Gesamtmasse < 3.5 t
N₂	Fahrzeuge für den Transport von Gütern mit einer Gesamtmasse zwischen 3.5 und 12 t
N₃	Fahrzeuge für den Transport von Gütern mit einer Gesamtmasse > 12 t

Tabelle 7-1 Nutzfahrzeugkategorien in der EU

²¹ (Official Journal of the European Communities, 1970)

²² (Official Journal of the European Union, 2001)

7.2 Geschwindigkeits- und Geländeprofile der generierten ISC-Testrunden

In den nachfolgenden Abbildungen sind die unterschiedlichen ISC-Testrunden, welche im Zuge der Arbeit generiert wurden, dargestellt.

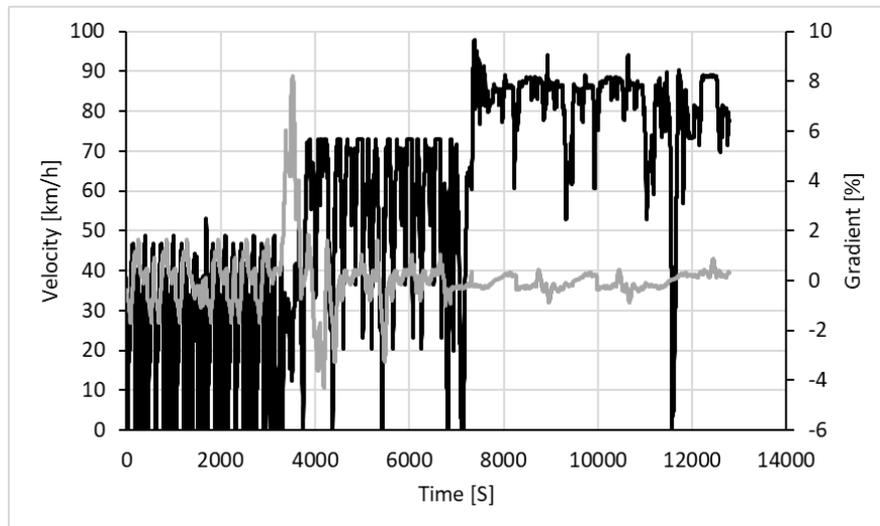


Abbildung 7-1 203 km ISC-Runde; 220 kW: 10 % Fahrzeugbeladung

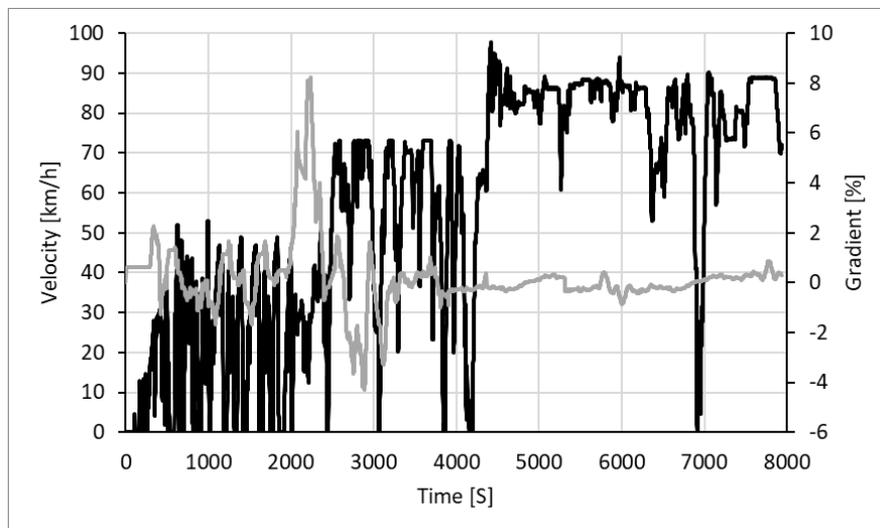


Abbildung 7-2 122 km ISC-Runde; 220 kW: 25 & 50 % Fahrzeugbeladung;
331 kW: 50, 75 & 100 % Fahrzeugbeladung

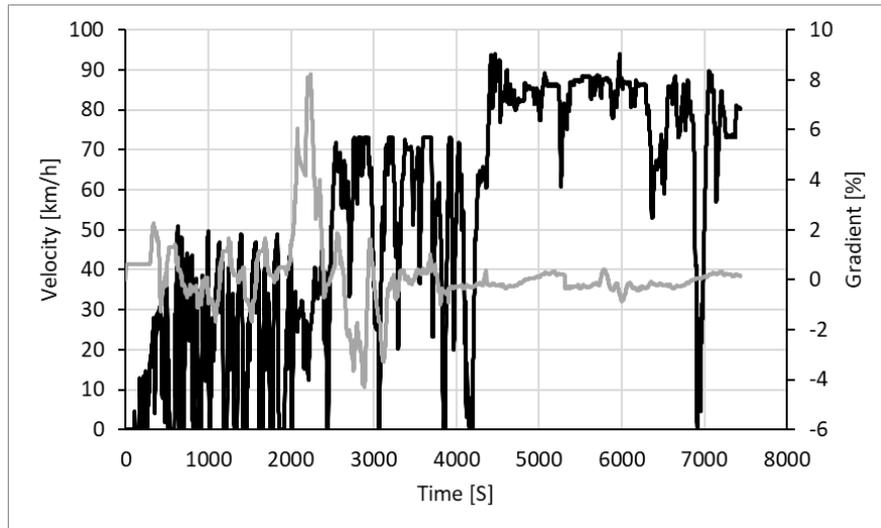


Abbildung 7-3 110 km ISC-Runde; 220 kW: 75 % Fahrzeugbeladung

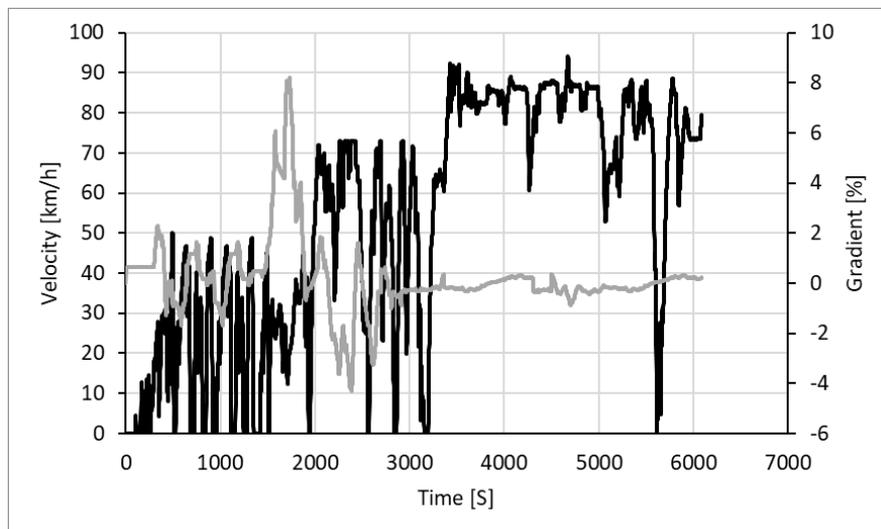


Abbildung 7-4 91 km ISC-Runde; 220 kW: 100 % Fahrzeugbeladung

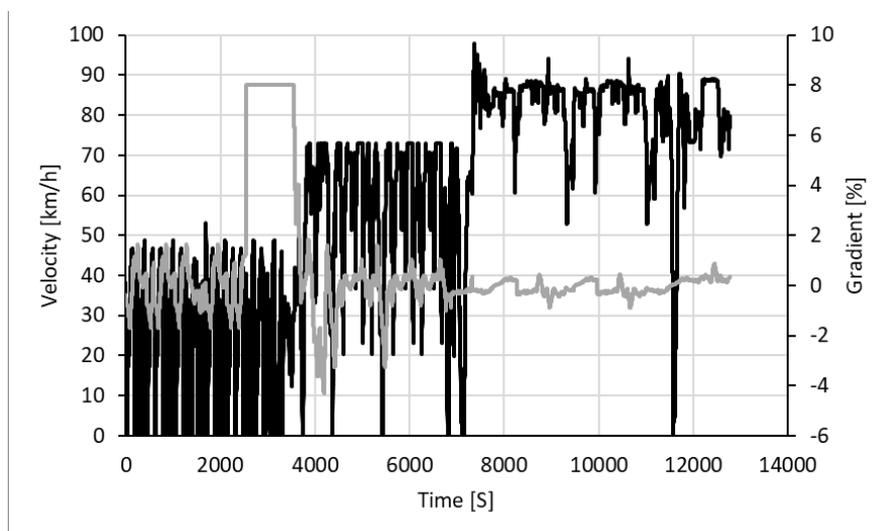


Abbildung 7-5 203 km ISC-Runde; 331 kW: 10 % Fahrzeugbeladung (203 km)

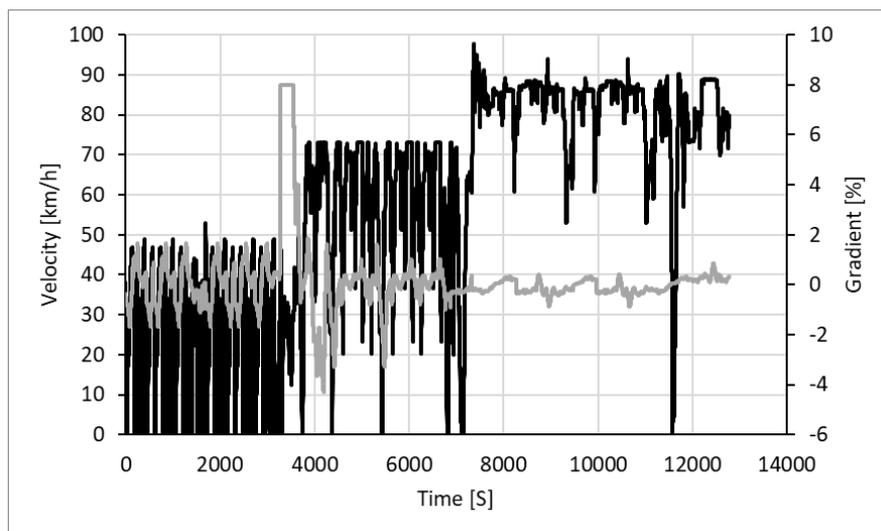


Abbildung 7-6 203 km ISC-Runde; 331 kW: 25 % Fahrzeugbeladung (203 km)

7.3 Performance Plots der zur Simulation verwendeten Substrate

Alle anschließend gezeigten Performance-Plots gelten für $SV = 100000$. In den Performance-Plots für den DOC ist die Konzentration der unterschiedlichen Spezies im Abgas in ppm in den Legenden der Grafiken angeführt. Es werden NO_2 -Bildung und HC-Konvertierungsrate dargestellt.

Da auch der DPF in der Simulation beschichtet war wird für diesen ebenfalls die NO_2 -Bildung betrachtet.

Die Performance-Plots des SCR wurden für fünf unterschiedliche NO_2/NO_x -Verhältnisse vor dem SCR durchgeführt. Es wurde ein ANR von 1.2 eingestellt, wobei 600 ppm NH_3 und 500 ppm NO_x im Feed-Gas vorgegeben wurden. Es werden NO_x -Konvertierung und N_2O -Bildung dargestellt, um die SCR-Performance zu beurteilen.

Die ASC Performance-Plots zeigen einerseits seine Fähigkeit NH_3 in Abwesenheit von NO_x zu konvertieren und andererseits die N_2O -Bildung bei unterschiedlichen NO_2/NO_x -Verhältnissen und einem ANR von 1.2.

7.3.1 DOC

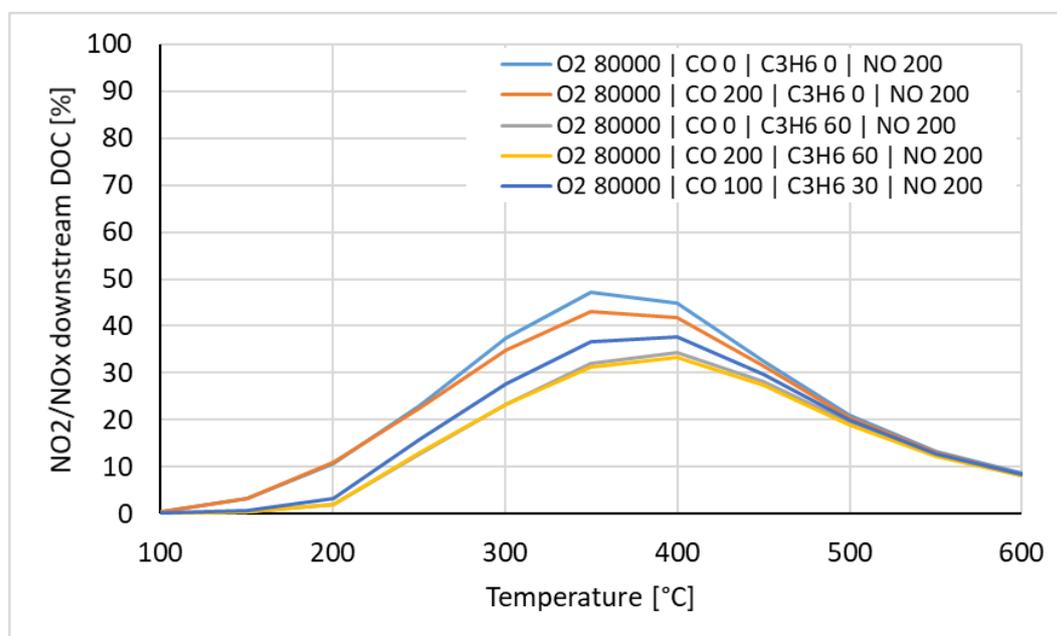


Abbildung 7-7 NO_2 -Bildung des DOC (SV = 100k)

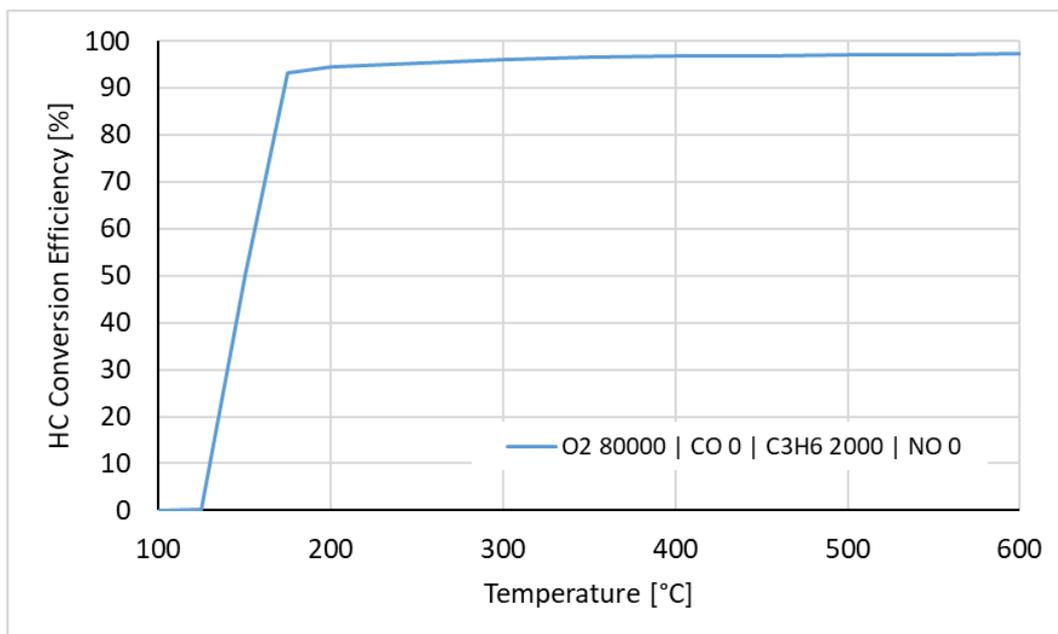
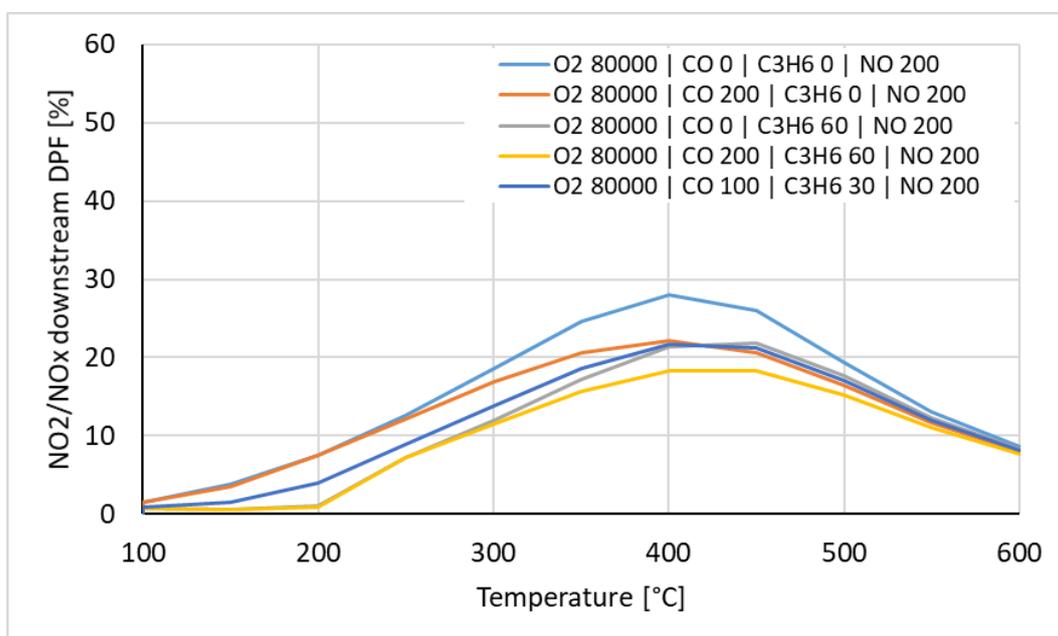
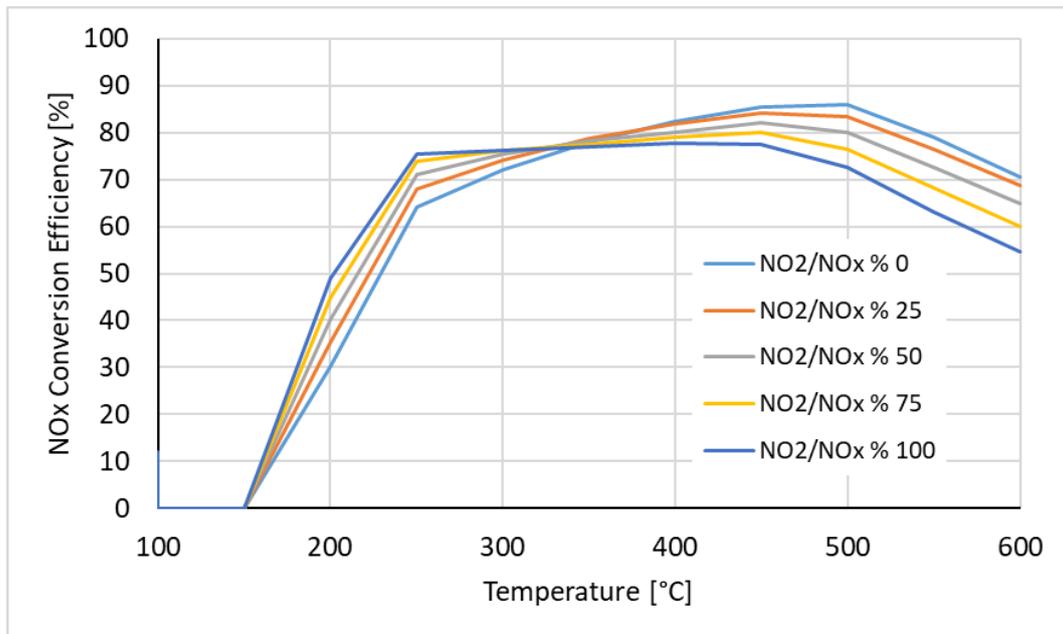
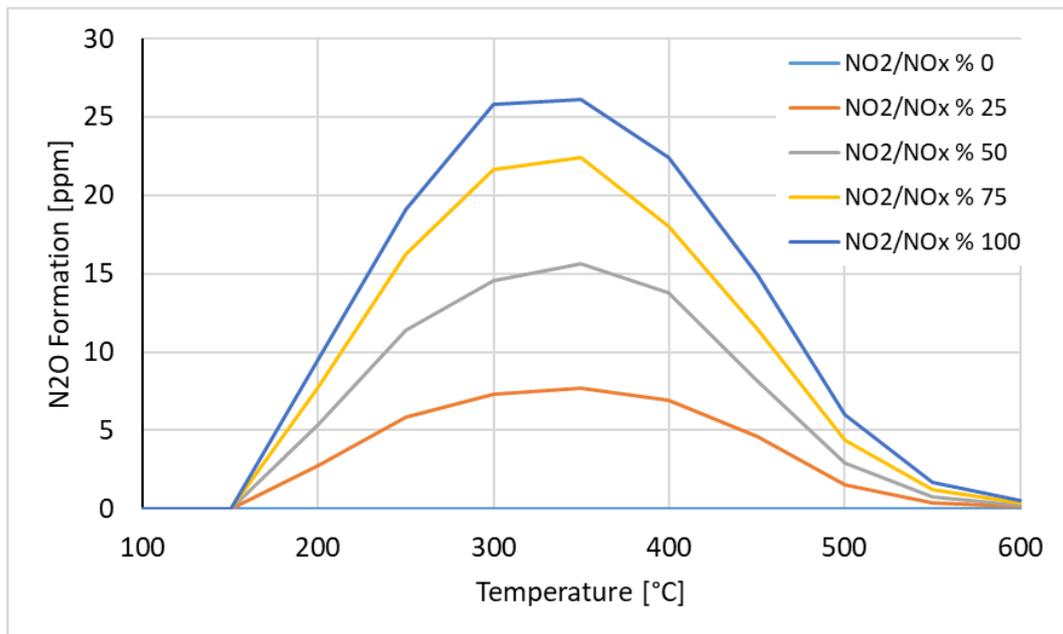


Abbildung 7-8 HC-Konvertierung des DOC (SV = 100k)

7.3.2 DPF

Abbildung 7-9 NO₂-Bildung des DPF (SV = 100k)

7.3.3 SDPF

Abbildung 7-10 NO_x-Konvertierung des SDPF (SV = 100k)Abbildung 7-11 N₂O-Bildung des SDPF (SV = 100k)

7.3.4 SCR

7.3.4.1 Cu-1

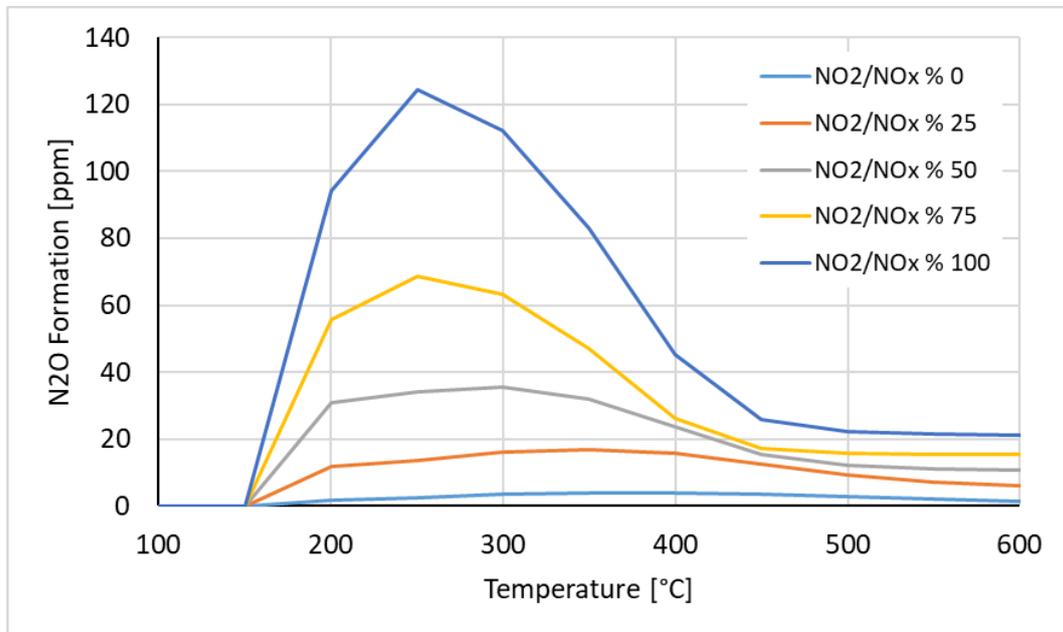


Abbildung 7-12 N₂O-Bildung des SCR Cu-1 (SV = 100k)

7.3.4.2 Cu-2

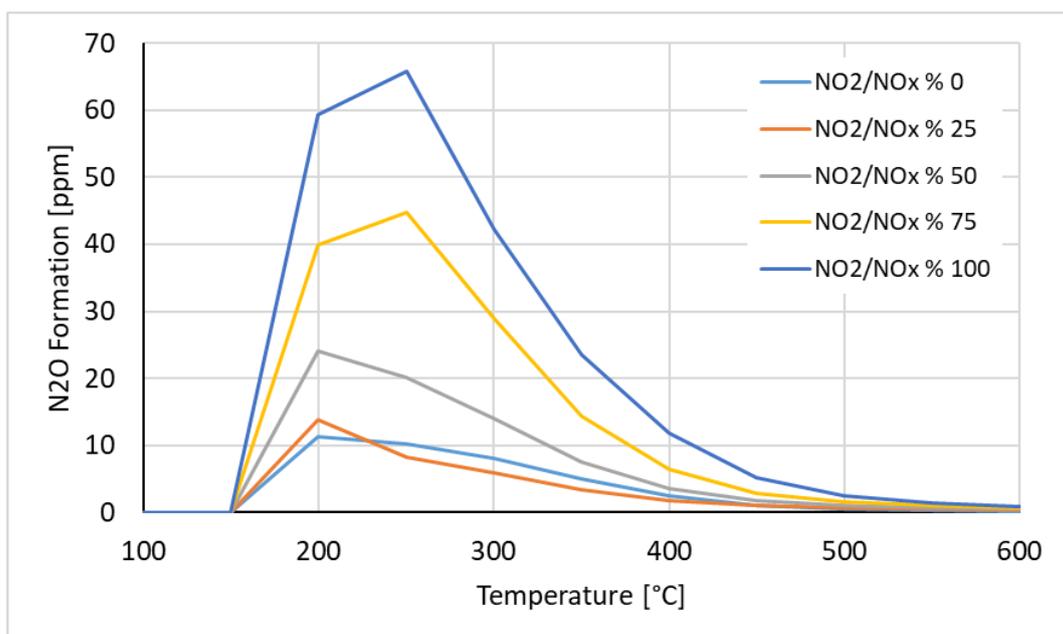
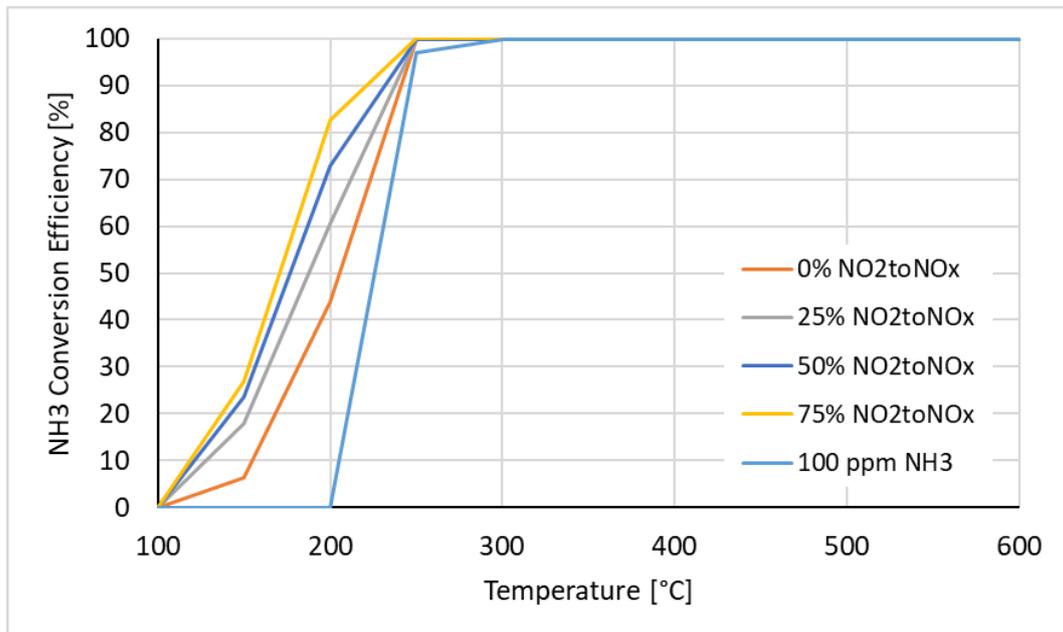
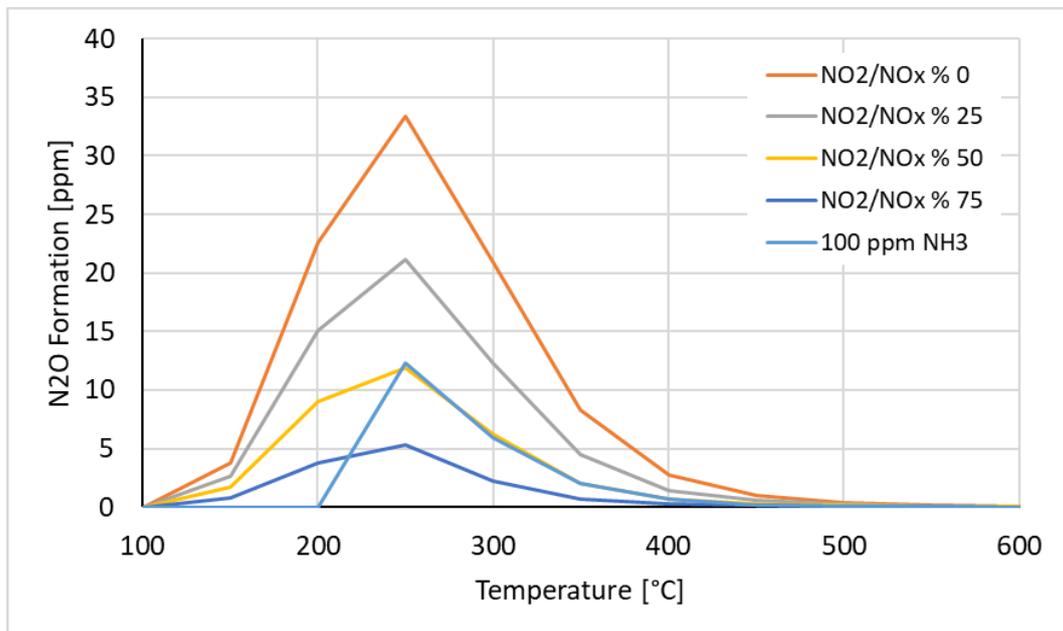


Abbildung 7-13 N₂O-Bildung des SCR Cu-2 (SV = 100k)

7.3.5 ASC

Abbildung 7-14 NH₃ Konvertierungsrate des ASC (SV = 100k)Abbildung 7-15 N₂O Bildung des ASC (SV = 100k)

7.4 Conformity-Faktoren der ISC-Runden nach EURO VI D und EURO VI E

Motorleistung kW	Beladung %	AGN -	CF EURO VI D -	CF cold -	CF EURO VI E -
220	10	AGN1	10.29	13.67	10.76
		AGN2	9.79	13.62	10.33
		AGN3	7.73	11.57	8.27
		AGN4	9.87	14.04	10.45
	25	AGN1	1.02	3.92	1.43
		AGN2	0.75	3.45	1.13
		AGN3	1.65	3.31	1.88
		AGN4	3.35	5.39	3.64
	50	AGN1	0.04	3.26	0.49
		AGN2	0.05	2.65	0.41
		AGN3	0.05	1.40	0.24
		AGN4	0.05	1.89	0.31
	75	AGN1	0.04	2.87	0.44
		AGN2	0.04	2.44	0.38
		AGN3	0.05	1.15	0.20
		AGN4	0.04	1.58	0.26
	100	AGN1	0.03	2.71	0.40
		AGN2	0.04	2.35	0.36
		AGN3	0.05	0.97	0.18
		AGN4	0.04	1.25	0.21
331	10	AGN1	5.88	8.90	6.30
		AGN2	5.66	8.60	6.07
		AGN3	4.18	6.70	4.53
		AGN4	5.25	8.20	5.66
	25	AGN1	1.01	4.27	1.47
		AGN2	0.81	3.51	1.18
		AGN3	1.14	3.24	1.44
		AGN4	2.90	5.69	3.29
	50	AGN1	0.13	2.35	0.44
		AGN2	0.03	1.86	0.28
		AGN3	0.04	0.92	0.17
		AGN4	0.04	1.30	0.22
	75	AGN1	0.49	2.07	0.71
		AGN2	0.03	1.73	0.27
		AGN3	0.08	0.80	0.18
		AGN4	0.07	1.12	0.22
	100	AGN1	0.42	2.03	0.64
		AGN2	0.03	1.70	0.27
		AGN3	0.08	0.75	0.18
		AGN4	0.08	0.96	0.20

Tabelle 7-2 Conformity-Faktoren ISC ohne Heizmaßnahmen

Motorleistung kW	Beladung %	AGN -	CF EURO VI D -	CF cold -	CF EURO VI E -
220 kW	10	AGN1	0.18	1.72	0.39
		AGN2	0.11	1.35	0.28
		AGN3	0.16	0.41	0.19
		AGN4	0.38	0.87	0.45
	25	AGN1	0.03	1.82	0.28
		AGN2	0.04	1.46	0.24
		AGN3	0.03	0.58	0.11
		AGN4	0.02	0.81	0.13
331 kW	10	AGN1	0.02	1.20	0.19
		AGN2	0.03	0.95	0.16
		AGN3	0.02	0.28	0.06
		AGN4	0.10	0.58	0.17
	25	AGN1	0.03	1.27	0.20
		AGN2	0.03	1.01	0.16
		AGN3	0.03	0.18	0.05
		AGN4	0.03	0.49	0.09

Tabelle 7-3 Conformity-Faktoren ISC TM1

Motorleistung kW	Beladung %	AGN -	CF EURO VI D -	CF cold -	CF EURO VI E -
220 kW	10	AGN1	0.21	0.76	0.29
		AGN2	0.12	0.59	0.19
		AGN3	0.17	0.12	0.16
		AGN4	0.40	0.26	0.38
	25	AGN1	0.02	0.85	0.14
		AGN2	0.04	0.63	0.12
		AGN3	0.03	0.02	0.03
		AGN4	0.02	0.16	0.04
331 kW	10	AGN1	0.02	0.83	0.14
		AGN2	0.04	0.64	0.13
		AGN3	0.02	0.03	0.02
		AGN4	0.10	0.09	0.10
	25	AGN1	0.02	0.94	0.15
		AGN2	0.02	0.68	0.12
		AGN3	0.03	0.02	0.02
		AGN4	0.02	0.06	0.03

Tabelle 7-4 Conformity-Faktoren ISC TM2